



TITLE:

核融合炉構造材料低放射化マルテンサイト鋼における複合・変動照射効果に関する研究(Dissertation_全文)

AUTHOR(S):

笠田, 竜太

CITATION:

笠田, 竜太. 核融合炉構造材料低放射化マルテンサイト鋼における複合・変動照射効果に関する研究. 京都大学, 2001, 博士(エネルギー科学)

ISSUE DATE:

2001-03-23

URL:

<https://doi.org/10.11501/3183618>

RIGHT:

核融合炉構造材料低放射化マルテンサイト鋼における
複合・変動照射効果に関する研究

笠田 竜太

博士論文

核融合炉構造材料低放射化マルテンサイト鋼における 複合・変動照射効果に関する研究

指導教官 木村晃彦教授

平成 13 年 1 月 5 日

京都大学エネルギー科学研究科
エネルギー変換科学専攻
機能エネルギー変換分野

学籍番号 エ博 0 2 4 5 号
笠田竜太

目 次

第1章 序論	1
1.1 核融合エネルギー	1
1.2 核融合炉工学	5
1.3 核融合炉材料	6
1.3.1 核融合炉用構造材料	8
1.3.2 研究開発戦略	9
1.4 低放射化フェライト鋼	13
1.4.1 低放射化フェライト鋼の開発	13
1.4.2 低放射化フェライト鋼の諸特性	15
1.4.3 低放射化フェライト鋼の照射効果	17
1.5 本研究の目的	25
第2章 実験方法	27
2.1 試料	27
2.1.1 化学組成と熱処理	27
2.1.2 試験片作製	27
2.2 照射方法	28
2.2.1 JMTR 照射	28
2.2.2 ATR 照射	29
2.2.3 FFTF/MOTA 照射	30
2.2.4 サイクロトロン照射	30
2.3 電子顕微鏡	31
2.3.1 微細組織観察	31
2.3.2 破面観察	32
2.4 陽電子寿命測定	32
2.4.1 原理	32
2.4.2 測定方法	35
2.4.3 解析方法	36
2.4.4 陽電子寿命の理論計算	38
2.5 微小試験片技術	40
2.5.1 マイクロビッカース硬さ試験	40

2.5.2	引張試験	41
2.5.3	シャルピー衝撃試験	42
2.5.4	スモールパンチ試験	44

第3章 低放射化マルテンサイト鋼における照射効果の照射量・ 照射温度依存性とニッケル添加効果・・・・・・・・・・46

3.1	緒言	46
3.1.1	低放射化マルテンサイト鋼の照射硬化挙動	46
3.1.2	低放射化マルテンサイト鋼の照射脆化に及ぼす ニッケル添加の影響	47
3.1.3	目的	48
3.2	実験方法	48
3.2.1	照射試験	48
3.2.2	照射後試験	51
3.3	実験結果	53
3.3.1	引張試験	53
3.3.2	シャルピー衝撃試験	56
3.3.3	TEM 観察	57
3.3.4	陽電子寿命測定	61
3.3.5	照射後焼鈍試験	62
3.4	考察	65
3.4.1	低放射化マルテンサイト鋼の照射硬化機構	65
3.4.2	照射硬化・脆化に及ぼす Ni 添加の効果	73
3.5	結論	75

第4章 低放射化マルテンサイト鋼の照射効果に及ぼすヘリウムの影響・・76

4.1	緒言	76
4.2	実験方法	77
4.2.1	試料	77
4.2.2	サイクロトロン照射	77
4.2.3	照射後試験	79
4.3	実験結果	79
4.3.1	SP 試験	79
4.3.2	硬さ試験	80

4.3.3	陽電子寿命測定	82
4.3.4	照射後焼鈍実験	83
4.4	考察	85
4.4.1	ヘリウム注入による機械的特性変化	85
4.4.2	低放射化マルテンサイト鋼におけるヘリウム・ トラッピングサイト	87
4.4.3	低放射化マルテンサイト鋼の高温 He 脆化	88
4.5	結論	89

第5章 低放射化マルテンサイト鋼における温度変動照射効果 90

5.1	緒言	90
5.2	実験方法	90
5.2.1	照射試験	90
5.2.2	照射後試験	94
5.3	実験結果	94
5.3.1	機械的特性変化	94
5.3.2	陽電子寿命測定結果	96
5.4	考察	98
5.4.1	照射硬化に及ぼす温度変動照射の影響	98
5.4.2	V-cluster 形成挙動に及ぼす照射温度の影響	100
5.5	結論	101

第6章 低放射化マルテンサイト鋼の析出挙動に及ぼす時効

および中性子重照射効果 102

6.1	緒言	102
6.2	実験方法	103
6.3	実験結果	103
6.3.1	時効材の観察・分析結果	103
6.3.2	照射材の観察・分析結果	108
6.4	考察	108
6.4.1	Laves 相形成に及ぼす照射の影響	108
6.4.2	Ti, Ta 複合添加の影響	112
6.5	結論	113

第7章 低放射化マルテンサイト鋼の照射効果のモデル化	115
----------------------------	-----

7.1	緒言	115
7.2	反応速度論モデル	116
7.2.1	カスケード損傷	116
7.2.2	自由点欠陥挙動	117
7.2.3	クラスター発達過程	118
7.2.4	パラメータ設定	119
7.3	モデル計算結果	121
7.3.1	一定温度照射	121
7.3.2	温度変動照射	122
7.4	結論	124

第8章 総括	125
--------	-----

Appendix A フェライト鋼の金属組織概論	127
--------------------------	-----

Appendix B 材料の硬化機構概論	134
----------------------	-----

参考文献	146
------	-----

業績リスト	154
-------	-----

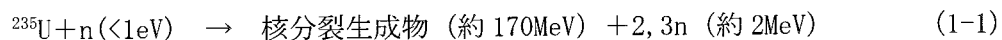
謝辞

第1章 序 論

1.1 核融合エネルギー

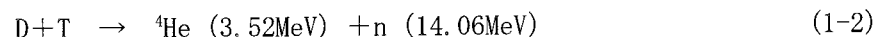
天空に燦々と輝く太陽が誕生してから、約 50 億年の年月が経過したと言われるが、C. F. von Weizsacker らによって、その輝きの所以が核融合反応であると提唱されたのは 1939 年のことであり、以来 60 年あまりの歳月が経過した。これとほぼ同時期に、Otto Hahn らによって核分裂反応が発見され、その二十数年後には核分裂炉発電が実用化されているのに対し[1]、核融合炉の実現を 20 世紀中に迎えることは不可能だった。核融合炉の実現は核分裂炉に比較して大幅に遅れていると言わざるを得ないが、その原因のひとつに核融合と核分裂における反応性の違いが挙げられる。以下に両者の反応について述べる。

軽水炉用燃料として用いられている ^{235}U の核分裂反応は、



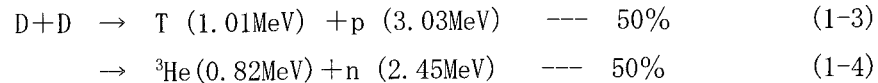
で表され、ある臨界濃度（量）以上の ^{235}U が存在し、且つ周囲に核分裂中性子を熱中性子程度にまで減速する媒体（例えば水）が存在すれば、原理的には核分裂反応が連鎖的に生じることになる[†]。ある世代の中性子数に対する一世代後の中性子数の比を増倍率 k と呼び、 $k=1$ ならば連鎖反応は時間に依存せずに持続する。 $k=1$ を満たした体系を「臨界」と呼び、原子炉設計においては、この条件を満たすように構成材やその配列を選択する[2]。また、原子炉定常運転時においては、臨界条件を常に満たすように反応を制御する。無論、反応の制御には困難（且つ暴走の危険）が伴うが、核分裂反応の連続的な発生の条件を満たすことは比較的たやすいことがわかる。

一方、核融合反応で代表的なものは、重水素（D）と三重水素（T）による D-T 反応



および、重水素どうしによる D-D 反応

[†] 実際に、約 20 億年前、アフリカのガボン共和国オクロのウラン鉱山において、天然原子炉と呼ばれるような持続的な核分裂反応が生じていたことが報告されている。また、1999 年に起きた東海村 JCO 核燃料転換加工施設における臨界事故は、高速増殖炉燃料用の比較的高濃度の硝酸ウラニル溶液を規定以上の量で取り扱っていたため生じた。（原子力安全委員会臨界事故調査委員会最終報告より）



である。しかし、最も低い反応エネルギー領域をもつ D-T 反応においてでさえ、数億度に相当する粒子エネルギーが必要になる。太陽は巨大なその大きさと自らの重力によって、燃料である水素を閉じ込めて核融合反応を持続しているが、地球上において同様の方法を用いることは不可能であり、何らかの手段（すなわち核融合炉）を講ずる必要がある。「地球にミニ太陽を」作るために研究・開発が進められている核融合炉の形式は、表 1.1.1 のように磁場閉じ込め核融合（MCF）と慣性閉じ込め核融合（ICF）の大きく二つに分けられる[3]。

表1.1.1 核融合炉形式の分類と代表的な実験装置

閉じ込め方式	磁界配位 (プラズマ形状)	名 称	代表的な実験装置
磁場閉じ込め方式	トーラス型	トカマク	JT-60U (原研) JET (欧) TFTR (米) *1
		ヘリカル	Heliotron-J (京大) LHD (核融合研) Wendelstein7-X (欧) *2
		逆磁場ピンチ (RFP:Reversed Field Pinch)	TPE-RX (電総研) MST (米) RFX (伊)
	球状トーラス (ST:Spherical Torus)	球状トーラス (ST:Spherical Torus)	HIST (姫工大) MAST (英) NSTX (米)
		コンパクトトーラス (CT:Compact Torus) *3	FIX (阪大) TS-3/4 (東大) LSX (米)
		内部導体装置	Proto-RT (東大) LDX (米) *2
	開放端型	タンデムミラー	GAMMA10 (筑波大) AMBAL-M (露) HANBIT (韓)
慣性閉じ込め方式		レーザー爆縮	GEKKO-XII号 (阪大) NIF (米) *2

*1 1997年運転終了

*2 建設中

*3 スフェロマックや反転磁場配位 (FRC:Field Reversed Configuration) の総称

磁場閉じ込め方式は、燃料原子を高温に加熱して生成したプラズマを磁場によって保持し、クーロン力に打ち勝つエネルギーを与えて互いに衝突させる方法である。ただし、核融合反応に必要なイオン温度は数億度にも及ぶため強力な閉じ込め磁場が必要になる。加えて、高温高密度プラズマの閉じ込め、制御は当初の予想[†]以上に困難であったことが、核融合エネルギー開発の遅れの一因であると言える。

表 1.1.1 に示すように、磁界形態は種々のものが考案されているが、核融合プラズマ保持性能に対して最初にブレークスルーを与えたのが、旧ソ連で開発されたトカマクである。図 1.1.1 に示すように、日本原子力研究所 (JAERI) の JT-60 を始めとする 3 大トカマクと呼ばれる日本、米国、欧州の各装置は 1990 年代に至って、臨界プラズマ条件に到達した[4]。

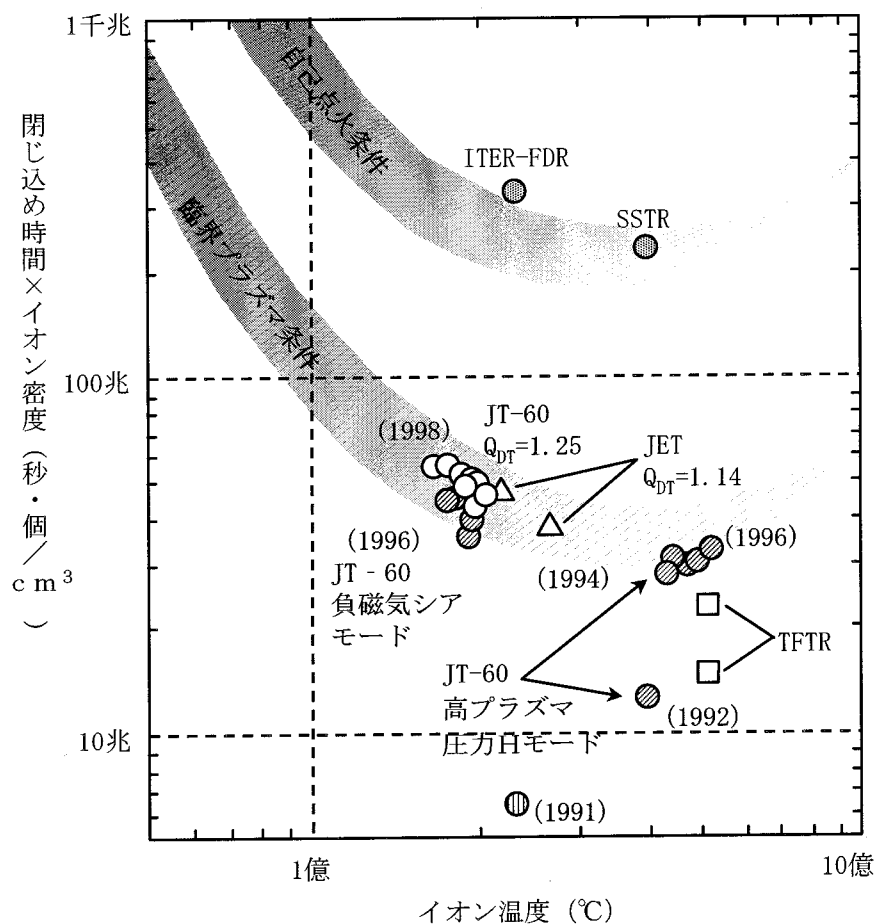


図1.1.1 ローソン図における核融合プラズマ研究の進展[4]

[†] 1955 年の第一回原子力平和利用国際会議において、議長を務めた Bhabha による「核融合の平和利用は 20 年以内に実現するだろう」という予言があった。

ただし、核融合炉における「臨界」とは、高温プラズマを発生・維持するのに必要な入力と核融合反応による出力が釣り合うことを示しており、外部入力なしで核融合反応が持続する「自己点火条件」を満たして初めて核分裂炉における「臨界」に到達する。1985 年の米ソ首脳会議を契機として、自己点火条件の達成と長時間燃焼の科学的工学的実証を目指し、国際熱核融合実験炉（ITER）計画が日米欧露 4 極共同により発足した。しかし現在に至るまでに、米国が計画からの撤退を決めるなど各極の社会・経済情勢は変化し、工学設計活動（EDA）は 1998 年の ITER 最終設計報告書（ITER-FDR）の提出後 3 年間延長され、低コスト化を図るため技術目標を再検討し、建設の実現性を高めることとなった（ITER-FEAT）[5]。この他の磁場閉じ込め方式として、核融合科学研究所（NIFS）に設置された大型ヘリカル装置 LHD（Large Helical Device）を始めとするヘリカル方式の研究・開発が、我が国独自の技術として進められている[6]。

慣性閉じ込め方式の中でも、大阪大学レーザー核融合研究センターを中心とするレーザー核融合研究が近年大きな進展を見せている。レーザー核融合は、強力なパルスレーザーを球形の燃料ペレットに照射し、表面に発生した高温のプラズマのロケット作用により燃料を加速・圧縮して核融合反応を起こす方法である。現在、米国で建設中の国立点火施設 NIF(National Ignition Facility)は自己点火条件を目指している[7]。

核融合反応の特性は、核融合エネルギー利用の困難さを示すものでは有るが、核融合炉に固有の安全性を与えることになる。すなわち、磁場の印加やレーザーの出力、あるいは燃料の投入を止めてしまえば核融合反応も生じないため、核融合炉は暴走しない。また、D-T 反応に比べて困難さは更に増すが、D-D 反応を用いることが可能になれば、燃料は海水中にほぼ無限大存在し、人類は恒久のエネルギー源を手にすることができる。将来の化石燃料の枯渇、地球温暖化対策なども併せて考慮すれば、核融合炉は将来のベース電力供給源として極めて有力な選択肢のひとつとなる。

1.2 核融合炉工学

前節で述べたように，最も研究の進んでいるトカマクにおいても，中心となる課題はプラズマ物理であった。しかし，臨界プラズマ条件が達成され，ITER による実験炉フェーズに移ろうとしている現在，核融合炉工学研究の重要性が増している。原子力委員会が 1992 年に策定した第三段階核融合開発基本計画においては，研究開発の目標を，「自己点火条件の達成及び長時間燃焼の実現並びに原型炉の開発に必要な炉工学技術の基礎の形成を主要な目標として実施する。」と定めた。また，「これを達成するための研究開発の中核を担う装置として，トカマク型の実験炉を開発する。」とあり，「その後の段階（原型炉以降）における閉じ込め方式の選択については，トカマク型以外の閉じ込め方式の発展の結果をも含めて総合的に評価し，将来その決定をなすべき」としている[8]。上述の目標を達成するための炉工学研究領域は，トカマク型核融合炉に関してだけでも，図 1.2.1 に示すように多岐に渡る[9]。これらの課題を，実験炉，原型炉という段階の中で解決していくことで，核融合発電実用化への道が開かれていく。実用化までの道のりの一例を図 1.2.2 に示す[10]。

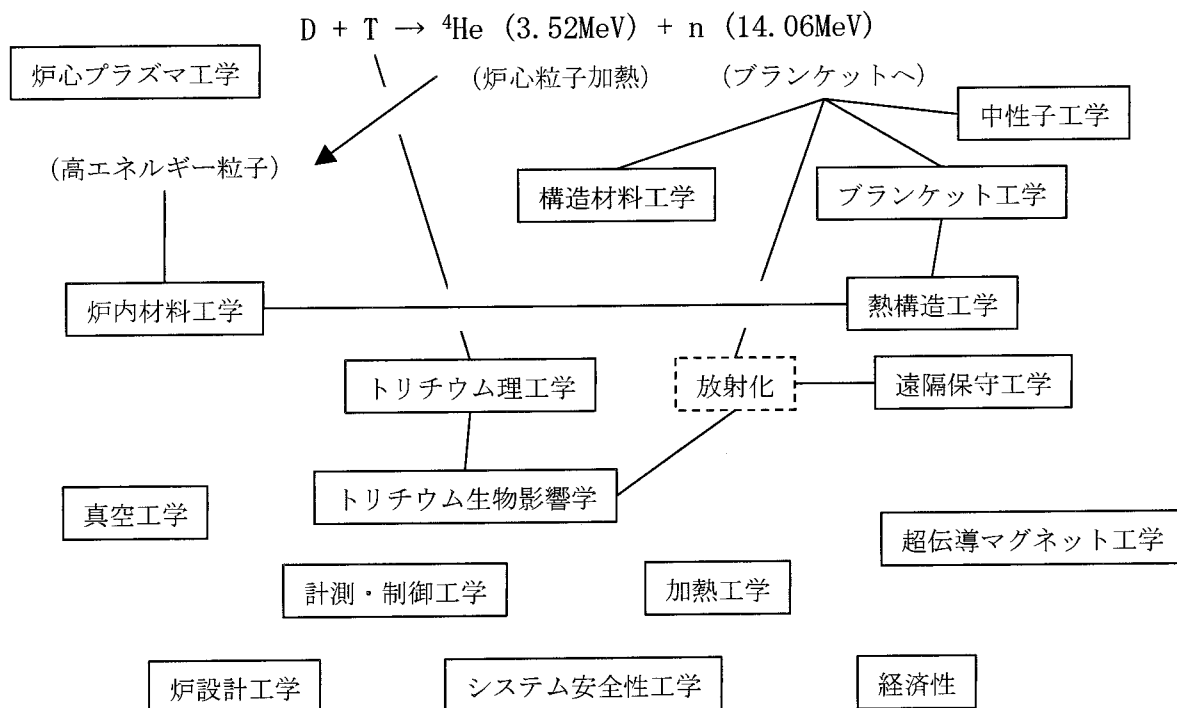


図1.2.1 核融合炉工学に関する学問分野[9]

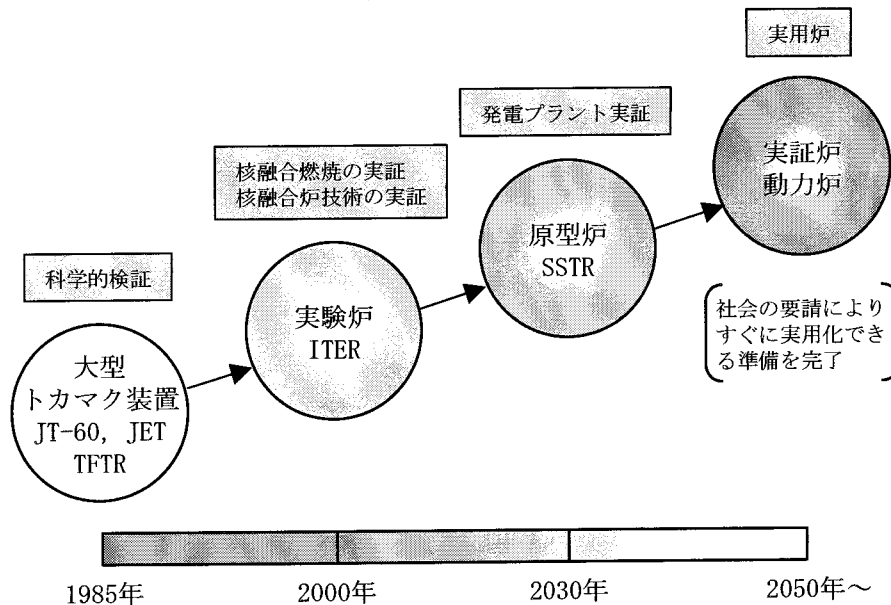


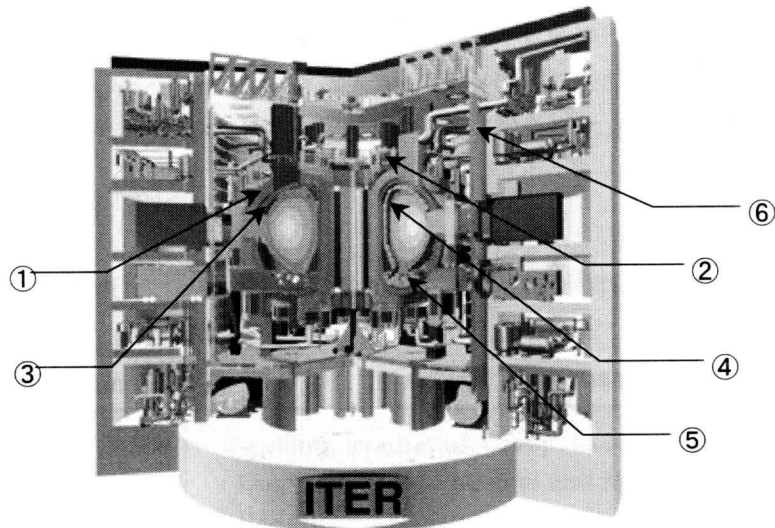
図1.2.2 核融合炉発電の実現への道のりの例[10]

1.3 核融合炉材料

核融合炉の成立性や発電プラントにおけるエネルギー変換効率の向上を考慮した場合、核融合炉工学における「材料」の役割は極めて大きい。トカマク型核融合炉は種々のコンポーネントから成り立っており、当然用いられる材料もその要素ごとに異なる。図 1.3.1 は、ITER-FDR の設計を例にとって、各コンポーネントを構成する材料をまとめたものである[11]。各構成材料は要求される課題から以下のように分類される。

- プラズマ対向・高熱流速機器材料
- 第一壁・ブランケット構造材料
- トリチウム増殖材料
- 超伝導マグネット材料
- 特殊目的材料

これらの諸材料の中でも最も過酷な条件に晒されるのが、第一壁・ブランケット構造材料である。本節では、核融合炉用構造材料について概観を述べる。



① Superconducting toroidal field coils (20 coils) Superconductor Structure	Nb₃Sn in circular Incoloy jacket in grooved radial plates Pancake wound, steel encased Wind, react and transfer technology
② Superconducting poloidal field coils (CS, PF2-PF8) Superconductor Structure	CS, PF2&7: Nb₃Sn , PF3-PF6, PF8: NbTi Square Incoloy Jacket, layer wound for CS, pancake wound for all others CS, PF 2&7: "wind react transfer" technology
③ Vacuum Vessel Structure Material	Double-wall welded ribbed shell Stainless Steel 316N
④ 1st Wall/Blanket (Basic Performance Phase) Structure Materials	armour-faced modules on toroidal backplate Be armour Copper alloy heat sink Stainless Steel 316LN structure
⑤ Divertor Configuration Materials	single null 60 solid replaceable cassettes W alloy and C plasma facing components Copper alloy heat sink Stainless Steel 316LN structure
⑥ Cryostat Structure Maximum inner dimensions Material	Double-wall welded ribbed cylinder with flat ends 36 m diameter, 30 m height Stainless Steel 304L
⑦ Heat Transfer Systems (water-cooled) Heat released in the Tokamak during nominal pulsed operation	2200 MW at ~4 MPa water pressure, 150°C

図1.3.1 ITERにおける主要な核融合炉材料

1.3.1 核融合炉用構造材料

構造材料の役割は、使用期間中に負荷された荷重や、使用環境条件に耐えることが第一であると言える。この点において、核融合炉用構造材料に求められる役割も一般の構造材料と変わり無い。しかし、その使用環境は人類が経験したことのない過酷なものであり、材料の選定に厳しい要求を突きつける。表 1.3.1 に核融合炉における主要な材料要件をまとめる[12]。

表1.3.1 核融合炉における主要な材料要件[12]

Operating Environment	Materials Response/Issue
Radiation - Displacement Damage - Transmutations	Swelling, Irradiation Creep, IASCC, Degradation of Physical and Mechanical Properties Helium and Hydrogen Embrittlement <i>Low Activation Characteristics</i>
Chemical Compatibility - Coolants - Tritium Breeders	Corrosion, Mass Transfer, Degradation of Mechanical Properties, Hydrogen Embrittlement
Elevated Temperatures	Reduced Strength, Time Dependent Deformation
Mechanical Stresses - Primary - Secondary (Thermal) - Cyclic - High Loading Rates (Disruptions)	Many Mechanical Properties Critical in Design: Tensile, Fatigue, Crack Growth, Fatigue Toughness, Creep and Relaxation
Complex Structure	Fabricability, Welding/Joining, Maintenance
Plasma - High Heat Flux - Divertor Structure - Coatings	Thermo-mechanical Response, Plasma Compatibility, Vacuum Integrity, Tritium Retention

第一壁・ブランケット構造材料の使用環境において最も特徴的である点は、高いエネルギー（14MeV）をもつ核融合中性子の照射を受けることである。材料への高エネルギー中性子の入射は、原子の弾き出しを引き起こし、照射欠陥を形成する（照射損傷）。照射欠陥やそれらの集合・離散によるミクロ的な組織変化は、材料強度などのマクロ的特性に多大な影響を及ぼす。このように、固体が荷電粒子や中性子などの放射線の照射を受けた際に、その性質が変化する現象を「照射効果」と呼ぶ。材料における照射効果の研究は、核分裂炉の発展とともに進められてきた経緯があり、一例として軽水炉圧力容器鋼の照射脆化に対する健全性評価が、原子炉の安全性確保や長寿命化の観点から重要な研究対象のひとつ

になっており[13]、これらの核分裂炉材料における照射効果研究は、核融合炉構造材料の研究・開発にとって有益な示唆を提供している。しかし、核融合炉構造材料はエネルギー・量ともに軽水炉以上の中性子による照射を受けるため、要求される中性子照射耐性は軽水炉材料に比べ遥かに厳しい。さらには、核融合中性子による材料構成原子の核変換、放射化が大きな問題となる。核変換、放射化が及ぼす材料への影響は、大きく三つに分けることができる。ひとつは、 (n, p) 、 (n, α) 反応によって多量に生成される水素およびヘリウム原子によるガス気泡の形成である。これらのガス原子の影響として、高速増殖炉の燃料被覆管（オーステナイト鋼）における著しい伸びの減少やスエリングを示すことが報告されているが[14]、核融合炉構造材料においてはヘリウム生成量が数 1000appm に及ぶため、材料の脆化やスエリングは更に加速されると懸念されている。二つめの核変換の影響として、金属原子の生成が挙げられる。例えば鉄原子は核融合中性子照射下でマンガン原子に核変換することが報告されており[15]、その結果として材料強度等に著しい変化をもたらす可能性がある。三つめは材料の放射化の問題である。核融合炉の保守・点検は遠隔操作が前提とされており、その際に使用されるロボットに組み込まれる電子機器類が正常に動作するために、誘導放射線量率はできる限り早く減衰することが望まれる。また、構造材料の交換・廃棄の際には、浅地処分を可能にするために数十年のオーダーで直接作業可能な線量率まで下がることが要求される。これらの観点から、低放射化構造材料の概念が生まれ、構造材料に使用できる元素の種類および量が制限され、また有害な放射化不純物の低減が必要になる。

1.3.2 研究開発戦略

ITER における主要な構造材料には、図 1.3.1 に示したように SUS316 系のオーステナイト系ステンレス鋼（SUS316LN）が採用されている。その理由としては、設計可能なデータベースが存在し、現在の技術レベルで装置の建設が可能であると判断されたためである。中性子照射下におけるオーステナイト鋼の使用可能範囲（デザイン・ウインドウ）を図 1.3.2 に示す[16]。同図に重ねてプロットしたように、ITER で想定されている中性子フルエンスは 0-0.3MWa/m² 程度であり、オーステナイト鋼の使用は ITER レベルでは許容範囲である。しかし、中性子フルエンスが約 10MWa/m² に達する原型炉の構造材料としては、オーステナイト鋼の耐照射性能は明らかに不足である。

オーステナイト鋼は、誘導放射能の点でも原型炉以降の使用には問題がある。誘導放射能の低減は、核融合エネルギーの社会的受容性を高めるために重要な課題であり、原型炉以降の核融合炉構造材料の選定において、「低放射化材料」であることが必須の条件になる。中性子照射による材料の放射化レベルを ALARA (As Low As Reasonably Achievable) の観点から設計されたものが低放射化材料である。低放射化に関わる基準は、核融合炉の通常

運転時，保守・点検時，事故時，廃棄処分および再利用時において異なり，種々の提案がなされている．図 1.3.3 に，原型炉における第一壁材料中の各元素の許容濃度を，Hands-on による再利用を可能とする観点から計算した一例を示す（参考文献[17]をもとに作成）．この図に示した基準からわかるように，核融合炉用構造材料に用いることのできる元素は非常に限定されることになる．オーステナイト鋼においては，例えば主要添加元素のひとつである Ni の許容限度が著しく厳しいために，低放射化の概念からも原型炉以降の使用は考えにくい．

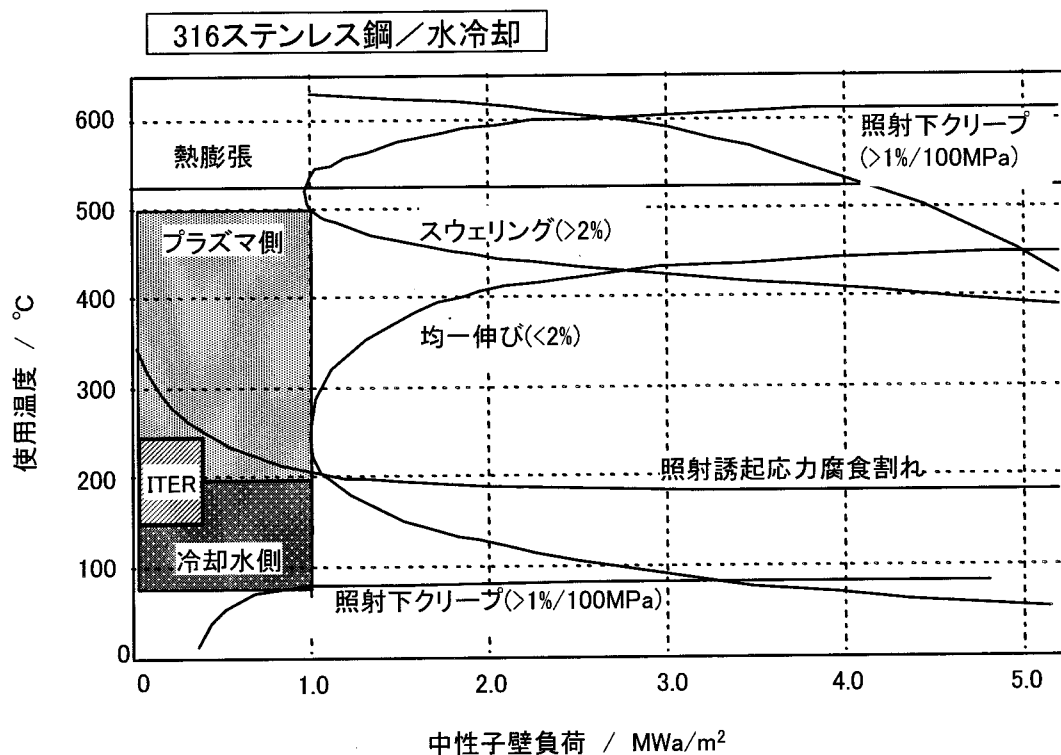


図1.3.2 オーステナイト系ステンレス鋼および低放射化フェライト鋼のデザイン・ウインドウ（設計許容範囲）とITERにおける使用範囲[16]

原型炉以降の主たる候補材料としては，低放射化材料であり，かつ核融合環境下での材料特性劣化に対して十分な耐性をもつと考えられる，低放射化フェライト鋼（RAF: Reduced-Activation Ferritic Steel），バナジウム合金，シリコンカーバイド（SiC/SiC）複合材料が提案されている．これらの構造材料の使用要件は，各極から提案されている概念設計において表 1.3.2 のように想定されている[18]．図 1.3.4 に示すように[19]，構造材料の使用温度の上昇は核融合炉発電プラントにおける効率の上昇につながるため，潜在的には，SiC/SiC 複合材料が最も優れた材料であり，続いてバナジウム合金，低放射化フェライト鋼ということになる．しかしながら，これら 3 種の候補材の研究・開発段階は，製造実績の規模，加工性・接合性の十全性，構造材としての使用実績における成熟度に加え，

中性子照射データベースの充実度において同列には扱えない。わが国の核融合構造材料研究・開発戦略においては、現時点（平成十二年度）での各材料の開発段階、技術基盤および将来の開発見通しを評価した結果、原型炉構造材料の要件を最も高い確実性をもって満たす可能性がある低放射化フェライト鋼を、開発優先順位の最も高い第一候補材料に位置付けた。一方、潜在的には優れた特性が期待できるバナジウム合金および SiC/SiC 複合材料は、現在のところ素材開発段階での開発要素が多いことから、先進候補材料として位置付けられている[8]。

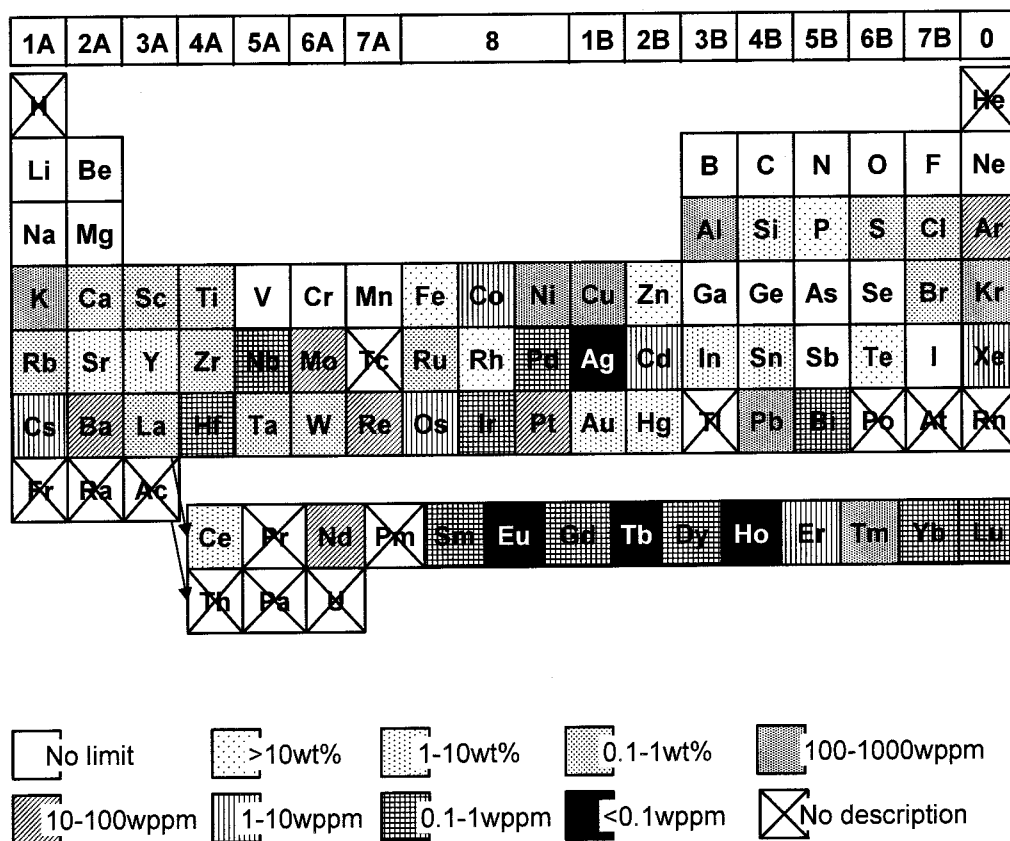


図1.3.3 Hands-onによる再利用を可能とする観点から計算した、原型炉第一壁材料における各元素の許容濃度(中性子フルエンス $12.5\text{MWy}/\text{m}^2$ ，冷却期間100年後)

表1.3.2 主なトカマク型核融合原型炉概念設計における
ブランケット第一壁設計条件検討例[18]

Design	SSTR	ARIES-RS	Proto-DREAM
Blanket Material	RAF/M (F-82H)	V alloy	SiC/SiC
Coolant	Pressurized Water	Liq.-Li	He
T_{in} / T_{out}	285/325°C	330/610°C	500/800°C
Max. Heat Flux	1MW/m ²	0.48MW/m ²	0.3MW/m ²
Max. Neutron Wall Load	5MW/m ²	5.6MW/m ²	1.6MW/m ²
Neutron Fluence	10MWa/m ²	14MWa/m ²	8MWa/m ²

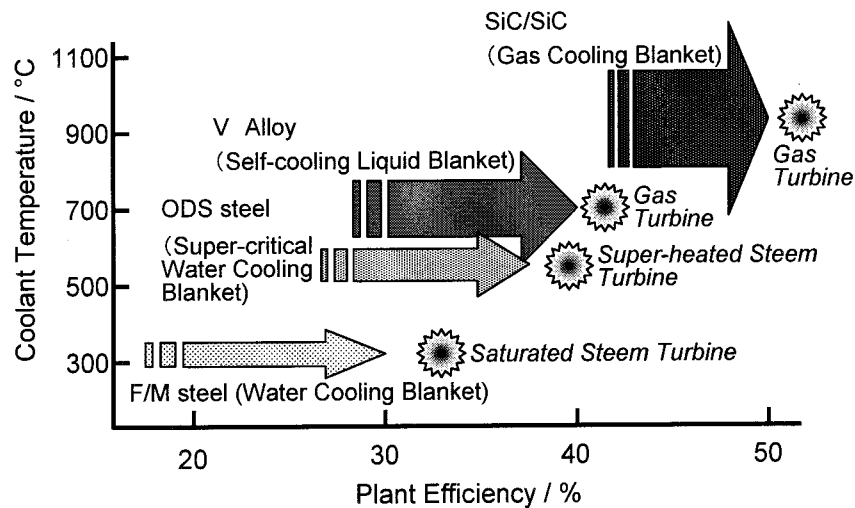


図1.3.4 ブランケットシステムの発展による核融合炉発電効率の進歩[19]

1.4 低放射化フェライト鋼

本節では、原型炉以降の核融合炉構造材料の第一候補材料として位置付けられている低放射化フェライト鋼の諸特性について概説する。

1.4.1 低放射化フェライト鋼の開発

図 1.3.2 に示したデザイン・ウインドウから判るように、オーステナイト鋼が原型炉以降での使用に不適切である要因の一つとして、重照射下でスエリングが著しく増大する点が挙げられる。図 1.4.1 に示すように、1979 年頃米国において、改良 9Cr-1Mo 鋼、HT-9 (12Cr-1Mo) 鋼、2.25Cr-1Mo 鋼などのフェライト系耐熱鋼のスエリングが、オーステナイト鋼と比較して、非常に小さいことが見出された[20]。我が国においても、1980 年頃からフェライト鋼が核融合炉構造材料候補材のひとつとして注目されるようになり、 δ フェライト/マルテンサイト 2 相鋼である JFMS 鋼 (9Cr-2Mo-1NiV Nb) 等の Cr-Mo 系鋼が、核融合炉構造材料候補材料として挙げられ、精力的に研究が行われた。これらの鋼種の組成と熱処理条件を表 1.4.1 に示す[21-24]。

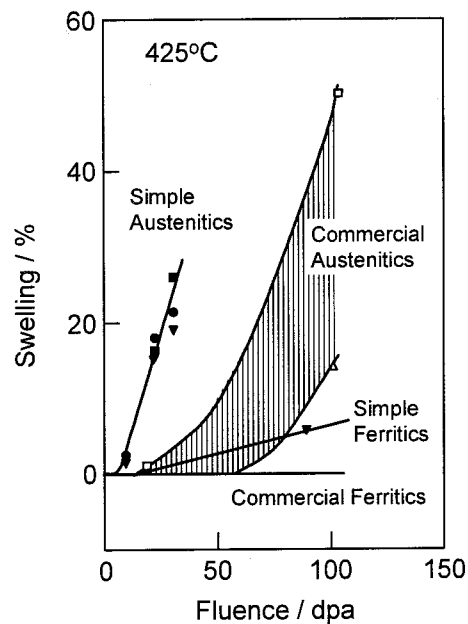


図 1.4.1 フェライト鋼とオーステナイト鋼におけるスエリング挙動の比較[20]

1985 年頃に、これらの材料が高エネルギーの中性子照射を受けると、強い誘導放射能を帯びることが問題となった。上述した従来鋼もしくはその改良鋼に含まれる Mo や Nb は、Fe よりも長寿命の放射性核種を生成するため、W, Ta 等で置き換えることにより誘導放射能の低減を狙った Cr-W 系鋼が開発された。我が国における代表的な鋼種は、東京大学グループ (当時) と新日本製鉄 (株) とが開発した JLF-1 鋼や、日本原子力研究所 (JAERI) と日本鋼管 (株) (NKK) が共同で開発した F82H 鋼がある[19]。これらの 7~9%Cr-2%W 鋼はマルテンサイト組織を有するため、低放射化マルテンサイト鋼とも呼ばれる。表 1.4.2 に、各極から提唱された低放射化フェライト鋼の名称と組成を併せて示す[25-28]。図 1.4.2 に示した 10MWy/m² の核融合中性子照射を受けた第一壁材料における放射能の減衰曲線から判るように[25]、低放射化フェライト鋼は使用後数十年で処理可能な放射能レベルに達し、従来鋼に比べて、飛躍的な低放射化が可能となった。

表1.4.1 フェライト系耐熱鋼の組成と熱処理[21-24]

No.	Material	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	Mo	V	Nb	W	B	N	Al
1	EM-12	0.09	0.37	0.9	-	-	0.12	9.6	1.91	0.28	0.41	-	-	-	-
2	HT-9	0.19	0.42	0.6	-	-	0.56	12.0	0.96	0.3	-	0.54	-	-	-
3	Mod. 9Cr-1Mo	0.10	0.41	0.39	0.013	0.003	0.11	8.52	0.96	0.22	0.08	-	-	0.038	0.003
4	JFMS	0.05	0.67	0.58	0.009	0.006	0.94	9.85	2.31	0.12	0.06	-	-	0.01	-
5	MANET I	0.14	0.37	0.76	0.005	0.004	0.92	10.8	0.77	0.2	0.16	-	0.0085	0.02	0.054
6	MANET II	0.1	0.14	0.79	<0.006	<0.007	0.66	9.94	0.59	0.22	0.14	-	0.007	0.023	<0.02

No.	Material	Co	Cu	Zr	Normalizing	Tempering	Structure	Ref.
1	EM-12	-	-	-	1050°C(0.5h)/AC	755°C(1.5h)/AC	δFerrite/Martensite	[23]
2	HT-9	-	-	-	1050°C(0.5h)/AC	780°C(2.5h)/AC	Martensite	[23]
3	Mod. 9Cr-1Mo	-	-	-	1040°C(0.5h)/AC	760°C(1h)/AC	Martensite	[21]
4	JFMS	-	-	-	1050°C(0.5h)/AC	775°C(1h)/AC	δFerrite/Martensite	[22]
5	MANET I	0.01	0.015	0.059	1075°C(0.5h)/AC	750°C(2h)/AC	Martensite	[24]
6	MANET II	<0.02	<0.01	0.034	965°C(2h), 1075°C(0.5h)/AC	750°C(2h)/AC	Martensite	[24]

表1.4.2 低放射化フェライト鋼の組成と熱処理[25-28]

No.	Material	Cr	C	Mn	P	S	V	B	N	W	Ta
1	JLF-1	9.0	0.1	0.45	-	-	0.19	-	0.05	2.0	0.07
2	F82H	8.0	0.1	0.5	<0.02	<0.01	0.2	0.003	<0.01	2.0	0.04
3	IEA/F-82H	7.5-8.5	0.08-0.12	<0.5	<0.01	<0.01	0.15-0.25	<0.001	<0.02	1.8-2.2	0.01-0.06
4	EUROFER	8.0-9.0	0.10-0.12	0.4-0.6	<0.005	<0.005	0.2-0.3	0.004-0.006	0.02-0.04	1.0-1.2	0.06-0.10
5	9Cr-2WVTa	8.5-9.0	0.1	0.45	-	-	0.25	-	-	2.0	0.07

No.	Material	Si	Ti	Normalizing	Tempering	Structure	Affiliation
1	JLF-1	<0.1	<0.015	1050°C(0.5h)/AC	775°C(1h)/AC	Martensite	Monbuscho/Japan
2	F82H	0.1	LAP	1040°C(0.7h)/AC	740°C(2h)/AC	Martensite	JAERI/Japan
3	IEA/F-82H	<0.3	LAP	1040°C(0.6h)/AC	750°C(1h)/AC	Martensite	JAERI/Japan
4	EUROFER	<0.05	<0.02	-	-	-	EU
5	9Cr-2WVTa	0.2	-	1050°C(0.5h)/AC	750°C(1h)/AC	Martensite	ORNL/USA

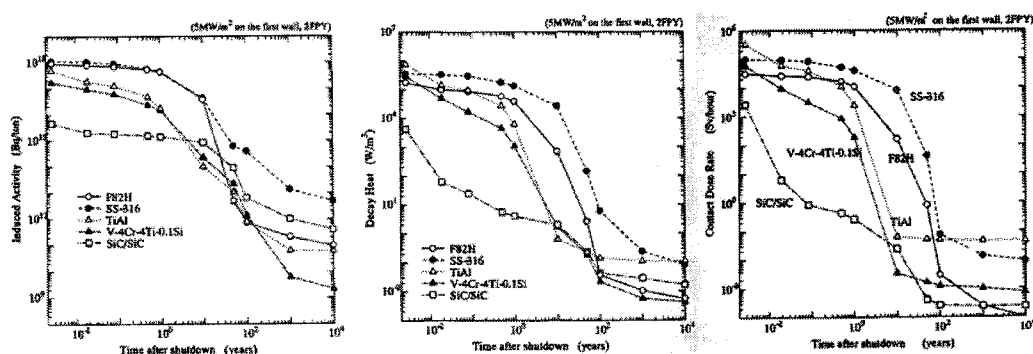


図1.4.2 10MWy/m²の核融合中性子照射を受けた構造材料の放射能，崩壊熱，線量率の減衰[29]

1.4.2 低放射化フェライト鋼の諸特性

ここでは、低放射化フェライト鋼の諸特性に関して述べる。尚、低放射化フェライト鋼の金属組織に関しては、Appendix 1 に詳細を記述した。

1.4.2.1 製造性

低放射化材料に共通して言える事だが、製造プロセスにおける不純物制御は核融合炉における材料コストを左右する問題である[19, 30]。低放射化の観点からは、有害不純物はできるだけ低減されることが望ましくはあるが、不必要な低放射化は核融合発電単価の高騰に結びつく恐れがある。現時点での低放射化フェライト鋼の大量製造に必要な技術は、従来のフェライト系耐熱鋼の製造において培われた知識や経験を流用できるため、他の候補材に比べて格段に進んでいる。大学共通材料である JLF-1 鋼では 1 トン、1.5 トン溶解が、JAERI と NKK が共同開発した F82H 鋼では 2 回の 5 トン溶解が (F82H IEA heat)、それぞれ実施されている。F82H IEA heat 材における不純物には、Ni が 200wppm、Nb が 1-2wppm 程度含まれている[31]。図 1.3.3 に示した Hands on limit に照らし合わせてみると、概ね基準を満たしていることがわかる。しかし、50wppm 含まれる Cu などのいくつかの元素に関しては、更なる低減が要求される。

低放射化フェライト鋼の溶接法としては、TIG (Tungsten Inert Gas) 溶接、EB (Electron Beam) 溶接などが検討されている[32]。Inoue らは、TIG 溶接した JLF-1 鋼の微細組織とビッカース硬さの溶接部位依存性を評価した[33]。通常、金属材料の溶接部の組織は粗く、強度が低下する。しかし、JLF-1 鋼等のマルテンサイト鋼は、自発的に生じるマルテンサイト変態により、溶接部および熱影響部は細かく硬い焼入れ組織となるが、さらに組織制御を行うことが必要とされている。よって、溶接法・溶接後熱処理の最適化と、照射試験も含めた溶接部での破壊靱性や疲労特性などの強度特性評価が重要である。しかし、他の候補材のように特殊な溶接法を適用する必要は無く、良好な溶接性を持つ材料と言える。

1.4.2.2 物理的特性

表 1.4.3 に、各候補材料における熱的特性を示す[34]。除熱効率の向上および熱応力の最小化のために、熱伝導率は大きく、熱膨張率は小さいことが望まれる。低放射化フェライト鋼における熱的特性は、オーステナイト鋼よりも優れており、先進材料であるバナジウム合金と比較しても遜色ないと言える。

フェライト鋼は強磁性体であるために、核融合炉構造材として使用する際には、誤差磁場の発生等によりプラズマの制御に問題を生ずる可能性がある。この問題を検討するために、日本原子力研究所那珂研究所の JFT-2M や、日立製作所(株)の HT-2 において、F82H 鋼を

真空容器として使用した場合のプラズマ安定性の試験が行われている。Miura らは、フェライト鋼板を JFT-2M の 16 個のトロイダルコイル直下全てに設置してプラズマ実験を行い、発生磁場がプラズマ閉じ込めに悪影響を与えずに、むしろ高速イオンのリップル損失低減という好ましい影響を実証した[35]。今後の更なる研究の進展が必要だが、プラズマとフェライト鋼の適合性についての懸念は当初よりも小さくなったと言える。

表1.4.3 核融合炉構造材料候補材の物理特性（非照射）[34]

Properties	F/M steels	Vanadium	SiC/SiC
Melting temp., °C	1420	1890	2800 (s)
Density, g/cm ³	7.8	6.1	2.7
Specific heat, kJ/kg C	0.58	0.8	0.6
Thermal exp., 10 ⁻⁶ /C	10.5	12.6	3
Thermal cond., W/m K	35.3	27.7	10-35

1.4.2.3 化学的特性

表 1.3.2 で示したように、低放射化フェライト鋼を原型炉に適用した場合、高圧水、もしくは超臨界水環境下での使用が想定される。一般に、ステンレス鋼はクロムを 12%以上含有することにより表面に不動態膜を形成するため優れた耐食性を持つが、これ以下のクロム濃度では耐食性に不安が生じる。原子炉内構造物に用いられるオーステナイト鋼で問題となっている応力腐食割れは、フェライト鋼では起こりにくいとされている。低放射化フェライト鋼において中心的に開発が進められている F82H 鋼や JLF-1 鋼でのクロム濃度は 7~9%である。低放射化フェライト鋼の腐食挙動についての研究は多くないが、Shiba らが行った高温水中腐食試験によれば、F82H 鋼の腐食量は 12%Cr 鋼である HT-9 とほぼ変わらないことが示された[31]。また、クロマイズ処理した F82H 鋼において腐食は観察されず、良好な耐食性を示した。一方、Misawa らによる高温水中腐食試験によると、Fe-9%Cr 合金は Fe-12%Cr 合金に比べ 2 倍の腐食速度を示したが[36]、靱性を考慮すればクロム濃度は 9%がふさわしいとしている[37]。

1.4.3 低放射化フェライト鋼の照射効果

低放射化フェライト鋼の基本組成を決定する上で、FFTF/MOTA 計画による重照射研究は多大な貢献をした。本節では、低放射化フェライト鋼の照射効果に関して、FFTF/MOTA 照射による結果を中心に概説する。

1.4.3.1 引張特性

照射による引張特性の変化は、降伏応力・引張強度の上昇（あるいは下降）、均一伸び・破断伸びの低下という形で現れる。特に、降伏応力の上昇は照射硬化と呼ばれ、照射脆化と強い相関があるため、多くの評価試験がなされている。

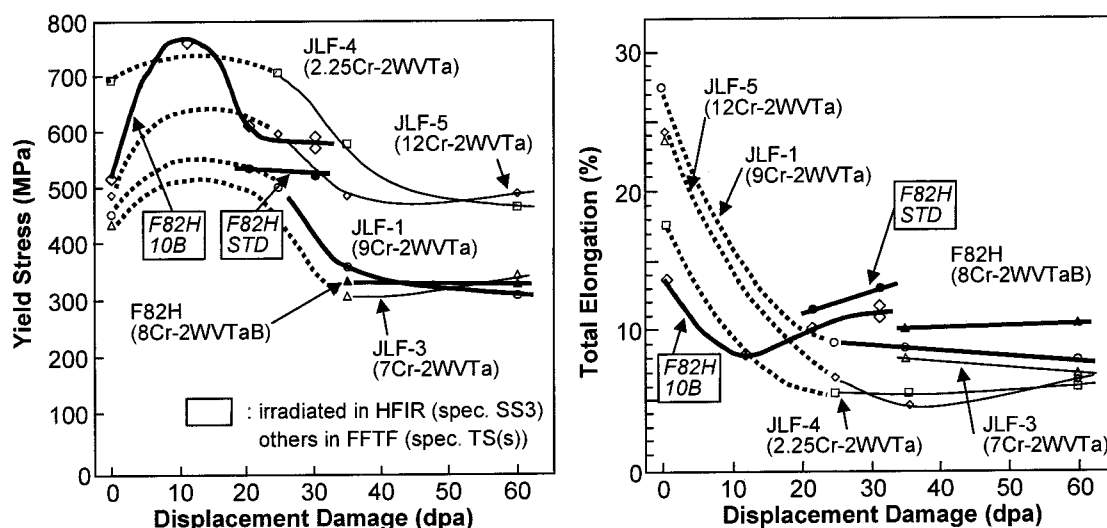


図1.4.3 低放射化フェライト鋼の降伏応力と全伸びの照射量依存性[15]

Kohyama, Shiba らは、FFTF/MOTA を用いて 410°C 照射した JLF 鋼、HFIR を用いて 400°C 照射した F82H 鋼について、図 1.4.3 に示すような引張特性の照射量依存性を評価した[15, 38, 39]。図を見て判るように、7-9%Cr マルテンサイト鋼における照射硬化は 2.25%Cr ベイナイト鋼や 12%Cr フェライト/マルテンサイト 2 相鋼よりも低いレベルにある。また、全ての鋼種における照射硬化は約 10dpa で飽和に達し、その後約 20dpa を越えるとより低い硬化量で飽和する傾向が見られた。延性劣化に関しても、30dpa 以上ではほぼ飽和し、変化が少なくなっていることがわかる。このように、HFIR 照射した ^{10}B 添加 F82H 鋼を除いては、約 400°C という比較的高い温度での 60dpa に昇る重照射によっても顕著な照射硬化は見られていない (^{10}B 添加鋼に関してはヘリウム効果の項を参照)。一方、Kimura らによる図 1.4.4 に示した 9%Cr マルテンサイト鋼における引張特性の照射温度依存性からわかるように、照射温度が 400°C を下回ると温度の低下と共に照射硬化が顕著に表れてくる[40]。

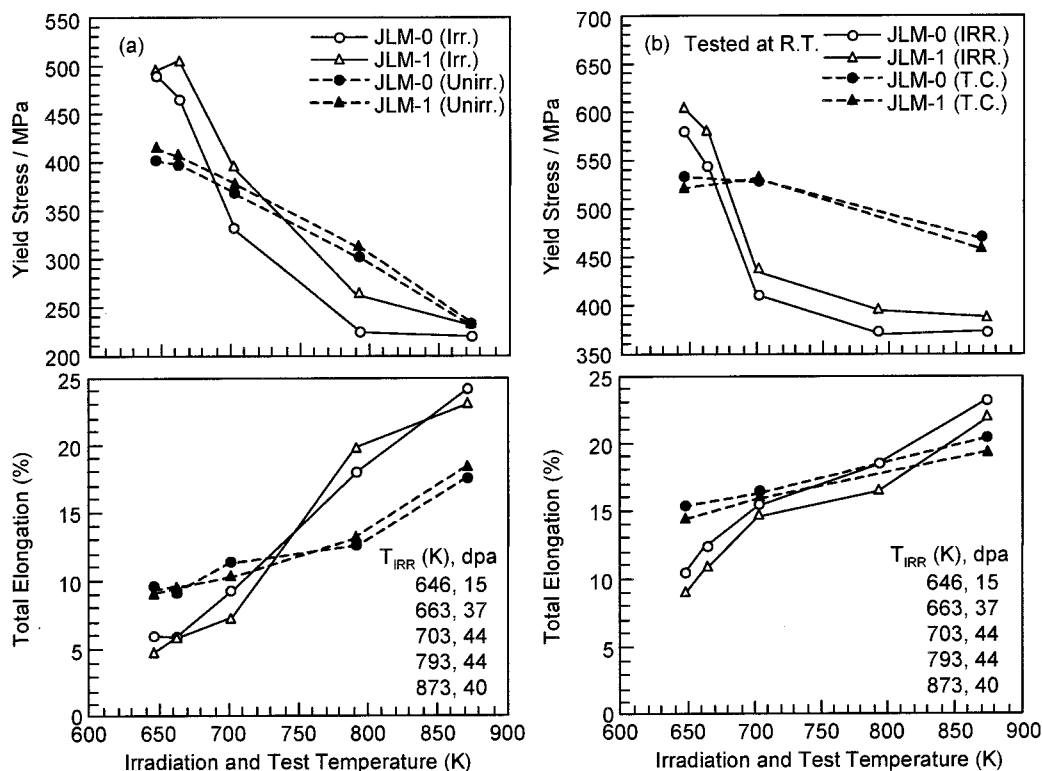


図1.4.4 FTF/MOTA照射した低放射化フェライト鋼 (JLM-0, 1) の降伏応力と全伸びの照射温度依存性. (a) 試験温度は照射温度, (b) 試験温度は室温, また対照材はサーマル・コントロール材[40].

FTF/MOTA は液体ナトリウムを冷却材とする高速炉を用いた照射であるため, 約 360°C 以下での照射は不可能である. よって, より低温での照射試験を行うためには JMTR や HFIR などの軽水炉を用いなければならない. 図 1.4.5 に示した, Shiba による HFIR 照射した F82H 鋼の降伏応力の照射量依存性から判るように, 300°C 以下の照射による硬化は 400°C 照射に比べ極めて大きく, 約 20 dpa の照射によっても飽和傾向は見られていない様である[41].

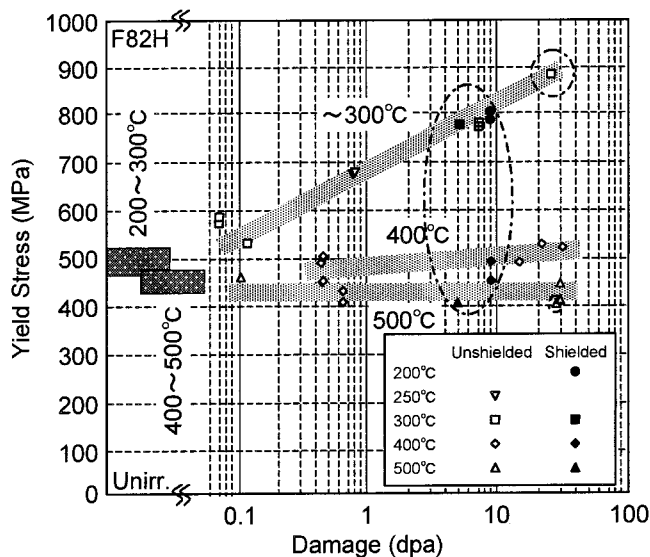


図1.4.5 HFIR照射したF82H鋼における降伏応力の照射量依存性. 白抜印は熱中性子遮蔽無し, 黒塗印は遮蔽有り[41].

以上に示した低放射化フェライト鋼に対してのみならず、従来鋼の中性子照射硬化についても多くの研究が成されてきている。しかし、照射硬化因子やその形成過程については不明な点が多いのが現状である。また、フェライト鋼の母相組織によって、主要な照射硬化因子は異なると考えられている。Morimura は、FFTF/MOTA 研究結果から、2.25%Cr ベイナイト鋼及び 12%Cr フェライト/マルテンサイト二相鋼では転位ループの形成による硬化の他に、炭化物などの照射誘起析出物による硬化が大きく寄与していることを示した。一方、9%Cr マルテンサイト鋼では照射誘起析出物が少なく、格子間原子型転位ループが主要な硬化因子であると報告している[42]。Abe らは、JMTR 照射した 9%Cr-1,3W マルテンサイト鋼における主要な硬化因子として空孔型転位ループや空孔-炭素複合体を提案している[43, 44]。しかし、低温照射でのマルテンサイト鋼の照射硬化因子は、透過型顕微鏡(TEM; Transmission Electron Microscopy)でも観察できないほど微細であり、上述したようなマイクロボイド、空孔-炭素複合体、転位ループ、微細析出物などの寄与が予測されているが、いずれも確証はない。

1.4.3.2 衝撃特性および破壊靱性

従来、軽水炉圧力容器用フェライト系低合金鋼の照射脆化は軽水炉寿命延長におけるクリティカルな要素として位置付けられ、精力的な研究が行われている[13]。核融合炉構造材料においても、照射脆化の抑制は極めて重要な問題であり、冷却材として高温高压水を使用する場合には、照射脆化が材料寿命を決定する因子となる可能性がある。照射脆化を調べるために、シャルピー衝撃試験や破壊靱性試験が広く行われている。

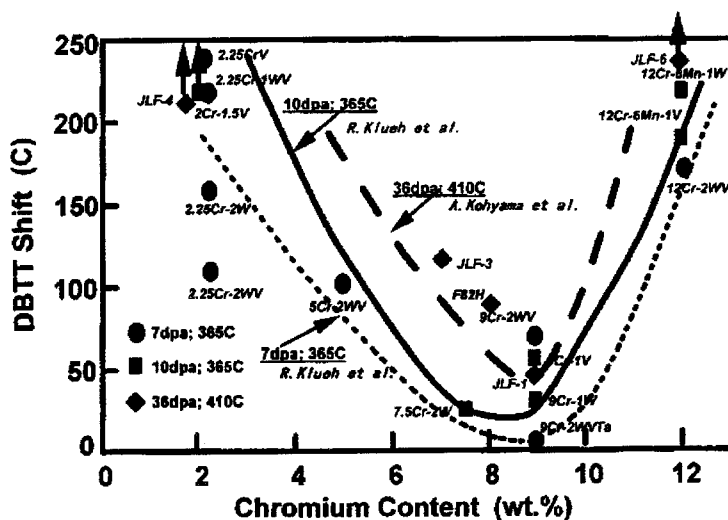


図1.4.6 FFTF/MOTA照射した低放射化フェライト鋼におけるDBTTシフトのクロム濃度依存性[15]。

低放射化フェライト鋼の衝撃特性に関しては、FFTF/MOTA 照射研究を通して重照射領域における多くのデータが得られている。図 1.4.6 に FFTF/MOTA 照射した各種フェライト鋼における DBTT の上昇 (Δ DBTT) のクロム濃度依存性を示す[15]。この図からわかるように、照射脆化の抑制のためにはクロム量は 7~9wt% がふさわしく、F82H 鋼や JLF-1 鋼では 365°C で 10dpa まで照射しても Δ DBTT は約 15°C であり、良好な結果が得られている。図 1.4.7 に Kimura らによる低放射化マルテンサイト鋼と従来鋼における照射脆化の照射温度依存性を示す[45]。 Δ DBTT は 375°C, 8dpa の照射で最大値約 60°C をし、破壊様式に変化は見られなかった。照射温度約 400°C までの脆化の原因は、転位ループや微小な $M_{23}C_6$ の析出による降伏応力の増加であると説明されている。また、400°C 以上の照射温度でも DBTT の上昇が見られるが、これは M_6C や Laves 相が析出して割れの起点となったことや、マルテンサイト組織の回復によって照射軟化が起きた結果、へき開破断応力が減少したためであると説明されている。

照射脆化に関する従来の研究により、低放射化フェライト鋼における最適クロム濃度として 7~9wt% が選択された。しかし、核融合炉環境において特徴的である核変換ヘリウムが照射脆化に及ぼす影響については、近年精力的に研究が行われているが、統一的な見解には至っていない（核変換ヘリウムの項参照）。

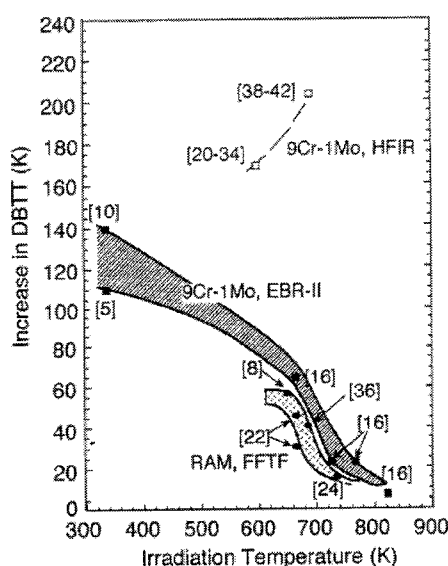


図1.4.7 FFTF/MOTA照射した低放射化フェライト鋼とEBR-II, HFIR照射した従来鋼におけるDBTTシフトの照射温度依存性[45]。

1.4.3.3 スエリング挙動

フェライト鋼が核融合炉第一壁材料として注目を集めている特長の一つとして、オーステナイト鋼にくらべて、ボイド・スエリングの小さいことが挙げられる（図 1.4.1）。オーステナイト鋼でも、チタンの添加や冷間加工を施すことにより改良が行われているが、その効果は潜伏期間を延長するだけであり、定常領域でのスエリング速度は 1%/dpa 程度の大きいスエリングを示す[46]。一方、フェライト鋼においては Morimura らが、FFTF/MOTA 照射した低放射化マルテンサイト鋼におけるスエリング挙動を詳細に調べている[47]。図 1.4.7 からわかるように最大のスエリング量を示した約 420°C, 67dpa の照射でも 1%以下であり、非常に優れた耐スエリング特性を持つと言える。しかし、スエリングの初期過程、すなわちマイクロボイドの形成に関しては TEM などによる直接的な組織観察が困難である上に、添加元素、不純物元素、そして核変換ヘリウムなどの影響が複雑に絡み合ってくるため、その機構を系統的に理解するには至っていない。

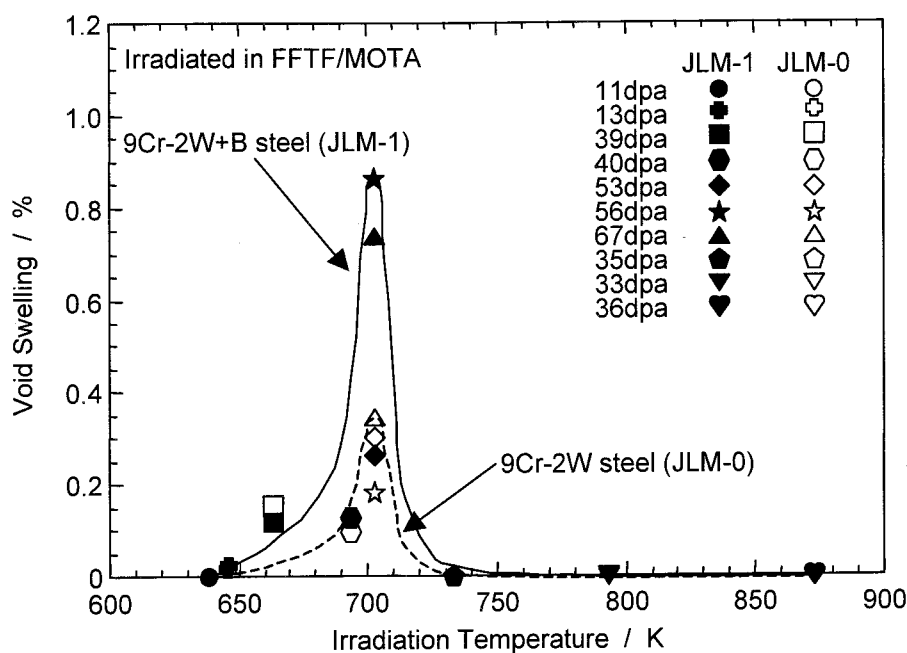


図1.4.8 FFTF/MOTA照射した低放射化フェライト鋼におけるスエリングの照射温度依存性とボロン添加効果[47].

1.4.3.4 核変換ヘリウム効果

核融合炉においては 14MeV という高エネルギーの中性子と材料物質との間の核反応により、核分裂炉に比べて数百から数千倍のヘリウムが発生する。ヘリウムは金属に殆ど固溶しないために、ヘリウムバブル等の形で材料中に集合し、スエリングや脆化挙動などに大きな影響を与える。このような核融合炉での材料照射条件を実現するためには核融合炉中性子に近いスペクトルを有する、いわゆる強力中性子源が必要であるが、建設の実現には更に時間を要する。ヘリウム効果の研究においては、He/dpa 比すなわちヘリウム生成速度が重要である。しかし、核分裂炉照射下での低放射化フェライト鋼におけるヘリウム生成速度は核融合炉に比べて通常 4 桁程度低いため、ヘリウム発生量を補う模擬実験が必要になる。これらの方法として、核分裂炉照射においては、ボロンやニッケルを用いた同位体調整法 (Isotope Tailoring)、スペクトル調整法 (Spectral Tailoring) がある。また、加速器を用いたヘリウム注入法や、高エネルギープロトン照射によるヘリウム生成法がある。以下に、これらの模擬実験について概説する。

○ボロン添加法

あらかじめボロン同位体 (^{10}B) を添加した試料に対し原子炉内で中性子照射を行い、

$^{10}\text{B}(\text{n}, \alpha)^7\text{Li}$ 反応で材料中にヘリウムを生成させる方法である（天然ボロン中にも、約 10% の ^{10}B が含まれている）。 ^{10}B 添加法を用いた研究は、Shiba ら [38, 41, 48–51], Yamamoto ら [52], Materna-Morris ら [53], Osch ら [54] によって報告されている。ボロン添加法における問題点としては、

- ・ 金属組織に与える影響
- ・ ヘリウムと同時に生成するリチウムの影響
- ・ ボロンの初期分布状態の影響

が考えられるため、この方法を用いるに当っては、十分な注意を要する。

○ニッケル添加法

ニッケル (^{58}Ni) の二段反応、 $^{58}\text{Ni}(\text{n}, \gamma)^{59}\text{Ni}(\text{n}, \alpha)^{56}\text{Fe}$ 、を利用しヘリウムを生成する方法である [55]。 ^{59}Ni は天然には存在しないため、熱中性子束および高速中性子束がともに大きい原子炉、すなわち HFIR (High Flux Isotope Reactor) のような混合スペクトル炉を用いて、照射の初期に高速中性子束をそれほど減らさないで熱中性子束を大きくしておき、照射が進むにつれて熱中性子束を減らすように中性子エネルギースペクトルを調整して照射し、He/dpa 比を極力一定に保つことが可能である。これをスペクトル調整法 (Spectrum Tailoring) と呼ぶ。これに対し、あらかじめ人工的に製造した ^{59}Ni を加えた試験片に対して中性子照射を行うことにより、多量のヘリウムを生成する方法を、同位体調整法 (Isotope Tailoring) と呼ぶ。ボロン添加法に比べ、ヘリウム生成速度が核融合炉条件に近いという利点がある。ニッケル添加法を用いた研究としては、Klueh らによる広範な研究があり、初期のヘリウム脆化研究に多くの貢献をしている [56–63]。しかし、もともとニッケルを含まない低放射化フェライト鋼への添加は、組織や強度を変化させ、照射後の損傷組織にニッケルそのものの効果(偏析、析出など)が現れてしまう危険性を考慮しなければならない。

○鉄同位体調整法

近年、FIST (Ferritic Isotope Spectrum Tailoring) 実験と呼ばれる、フェライト鋼の主要構成元素である鉄元素を同位体に置換した試料に対する HFIR 照射試験が行われた [64]。この試験で用いられた同位体 ^{54}Fe は、 $^{54}\text{Fe}(\text{n}, \text{p})^{54}\text{Mn}$ による水素の生成と、 $^{54}\text{Fe}(\text{n}, \gamma)^{55}\text{Fe}(\text{n}, \alpha)^{52}\text{Cr}$ または $^{55}\text{Fe}(\text{n}, \text{p})^{55}\text{Mn}(\text{n}, \gamma)^{56}\text{Fe}$ によるヘリウム生成を同時に行うことが可能である。この方法を用いることで、低放射化フェライト鋼に本来含まれない元素を添加することなく、ヘリウムと水素の生成速度を核融合炉環境に近い条件で設定できる利点がある。しかし、 ^{54}Fe 同位体は非常に高価である上、放射性核種である ^{54}Fe を用いた試料の製造には厳しい制限がある。FIST 実験による核変換ガス原子効果の研究は、Shear Punch 試験を用いた降伏応力評価と組織観察に留まっており、延性脆性遷移挙動を調べた例は無

い。

○高エネルギー・ヘリウム注入法

サイクロトロン加速器を用いて、数 10～100MeV の α 粒子を試料に注入する方法である。ヘリウムを材料の組成を変えることなく、高い He/dpa 比で打ち込むことができる。現在のところ、数 100～数 1000appm に昇るヘリウムを含む試料に対して、引張試験等の機械的特性試験や組織観察が行われている[65-76]。ただし、照射容積が小さくイオンの飛程が 1mm にも満たないため、機械的性質を調べるためには微小試験片技術が不可欠である。また、損傷初期過程や He/dpa 比が核融合炉または核分裂炉とは異なる点を十分考慮しなければならない。

○二重ビーム照射法

核融合炉環境下でのヘリウム生成を模擬する上で、ヘリウムの生成速度 (He/dpa ratio) はヘリウム脆化やスエリング挙動などに大きな影響を及ぼすと考えられている。2 台の加速器を用いることにより金属イオンとヘリウムイオンを同時に照射する二重ビーム照射法は、比較的簡便に He/dpa ratio を変化させることが可能である。我が国では、東京大学の HIT (High-fluence Irradiation Facility) を用いた研究が、この方法による先駆的な役割を果たし、低放射化フェライト鋼についても Katoh らの報告がある[77, 78]。現在では、更に性能を高めた京都大学エネルギー理工学研究所の DuET (Dual-beam for Energy Technology) による研究が精力的に遂行されている。二重ビーム法における損傷速度は中性子照射に比べて 2～4 桁速いため、核融合炉材料にとって工学的に有用なデータを得るためには照射損傷過程の基礎的な理解を進める必要がある。また、損傷領域が極めて小さいので、機械的性質を調べるためにはナノインデント等の微小試験技術の確立が必要である。

○高エネルギー・プロトン照射法

近年欧州や米国では、強力中性子源 (High-Power Spallation Neutron Source) の開発を睨んで、スイスの PIREX (Proton Irradiation Experiment) や米国の LANSCE (Los Alamos Neutron Science Center) における高エネルギープロトン照射実験が行われている。数 100MeV のプロトン照射により、照射試料中での (p, α) 反応からヘリウムを生成することが出来る。PIREX では、590MeV プロトン照射により、約 10^{-6} dpa/s の損傷速度のもとで、約 100appm/dpa のヘリウムを生成することが可能である[79-83]。また、LANSCE では、800MeV プロトン照射が可能である[84, 85]。これらの照射試験により、F82H 鋼における引張特性や

微細組織の評価がなされている。

ここで示した各試験法にはそれぞれ一長一短があり、その特徴を把握した上でヘリウム効果を評価しなくてはならない。

1.4.4 その他の特性

図 1.3.4 で示したように、核融合炉発電の高効率化のためにも、構造材料の使用温度を高めることが必要である。特に低放射化フェライト鋼においては、他の候補材料に比べて高温強度の不足が指摘されており、Ta, Al, Y など微量元素の添加による改善や[86, 87], 酸化物分散強化 (ODS; Oxide Dispersion Strengthened) 型低放射化フェライト鋼の開発が行われている[88-90]。また、高温では照射下クリープに対する寸法安定性の確保も重要になる。低放射化フェライト鋼の照射下クリープ挙動については、JLF-1 鋼や F82H 鋼に対して FFTF/MOTA 照射による圧力管クリープ試験が行われている[25]。この結果により、JLF シリーズ鋼のなかでは 7~9% のクロムを含む材料が、照射下クリープ特性の点で優れていることがわかった。今後は、照射下クリープ機構の解明とともに、耐照射下クリープ特性に優れた鋼の合金設計が必要になる。

1.4.5 低放射化フェライト鋼のデザイン・ウインドウ

以上に示した低放射化フェライト鋼の照射効果研究により、7~9% のクロムを含む JLF-1 鋼や F82H 鋼に代表される低放射化マルテンサイト鋼が候補材料として選択された。これまでの研究成果は、図 1.4.9 などに示すデザイン・ウインドウに集約されている[91, 92]。しかし、これらの結果は、FTTF/MOTA 照射などによる定常・累積効果を反映するものであり、核融合環境下で問題となる核変換ヘリウム効果や変動照射環境の影響などについては未解明であるため、暫定的なものに留まっている。

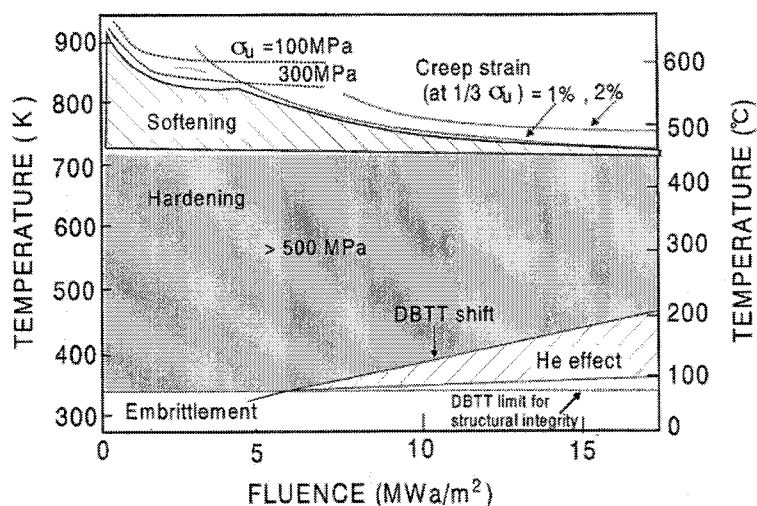


図1.4.9 トカマク型核融合炉水冷却ブランケット構造材料用低放射化マルテンサイト鋼のデザイン・ウインドウ[92]。

1.5 本研究の目的

1.4.5節で述べたように、低放射化フェライト鋼の照射効果に関する従来の研究によって、特に耐照射脆化の観点から 7~9%のクロムを含む、低放射化マルテンサイト鋼が最適材料として選定され、図 1.4.9 のようなデザイン・ウインドウが策定された。しかしこれらの研究では、可能な限り照射条件を単純化した定常照射による材料特性変化を求める研究が中心的であり、実際の核融合炉で想定される照射温度の変動効果や核変換に代表される複合効果の予測される、いわゆる非定常照射環境の影響については不明確な点が数多く残されている。第一に問題となっているのは、核融合炉環境下で特徴的な核変換 He の生成に起因する材料特性変化に対する、統一的な見解が得られていない点である。従来の研究によれば、核変換 He は、弾き出し損傷との複合作用により、材料特性変化に対して著しい影響を与えることが懸念されている。図 1.4.9 には、高温域において He の影響により材料の使用限界の狭まることが示されているが、この根拠となっている同位体調整法による He 脆化研究には大きな問題があることは既に触れており、必ずしも同図の予測が妥当であるとはいえない。また照射温度に関しては、一定温度照射による照射下クリープや照射脆化といった材料劣化評価を行うことを通じて、構造材料の使用温度限界を明確にすることが推し進められてきたが、照射中の温度変動が、材料の微細組織発達過程、ひいては材料強度特性等に著しい影響を与える可能性が指摘されている。更に実際の核融合炉環境下においても、炉の起動時に材料の照射温度が変化することが予測されており、温度変動照射効果研究の重要性は大きい。

以上のような複合・変動照射効果の工学的重要性を鑑みて、本研究においては、核融合炉の定常運転下のみならず非定常運転に対応した照射条件の変動および核変換のような複合条件下における低放射化マルテンサイト鋼の材料特性変化を明らかにすることを第一の目的とする。

上記の複合・変動照射効果研究は、工学的のみならず学術的にも重要な課題である。低放射化マルテンサイト鋼の照射効果に関しては、核変換のほとんど生じないような一定温度照射の場合においても、機構論的な解釈は必ずしも満足のいくものではない。その原因として、

- 磁性体であるために、透過型電子顕微鏡による微細組織観察が著しく困難である、
- 焼戻しマルテンサイト鋼等では、多種多量の合金元素や析出物、高密度の転位を含んでおり、照射誘起欠陥の同定が困難である、

ことが挙げられ、微細組織変化と、機械的特性変化等の巨視的な性質変化を関連付けることが極めて困難であった。照射条件の複合・変動化によって、事象はより複雑になることも十分考えられることではあるが、温度変動照射による低放射化マルテンサイト鋼の微細組織変化を追うことにより、一定温度照射だけでは直接知ることの出来なかった事象が明確になり、照射下における点欠陥挙動の本質が明らかになることが期待される。He 効果に

関しても同様であり、空孔と大きな相互作用を持つ He が照射効果に及ぼす影響を知ることによって、低放射化マルテンサイト鋼の照射効果における空孔の役割を明確にできると考えられる。

本研究においては、低放射化マルテンサイト鋼の使用限界を決定する劣化因子のひとつである照射硬化・脆化と空孔集合体挙動の關係に着目しながら、一定温度照射や複合・変動照射下における点欠陥挙動と、それらに伴う材料特性変化を明らかにし、核融合環境下における低放射化マルテンサイト鋼の材料挙動を予測するための損傷組織発達の素過程に関する基礎的知見を得ることを第二の目的とする。

以下に論文の構成と各章間のつながりについて述べる。

- 第 3 章では、低放射化マルテンサイト鋼における照射硬化の照射量・温度依存性の評価とともに、陽電子寿命測定を行うことにより、空孔型欠陥集合体の挙動を調べ、照射硬化との相関を検討した。また、Ni 添加による He 生成量が充分少ない JMTR や ATR による照射を行い、微細組織発達、照射硬化・脆化に及ぼす Ni 添加の影響を調べ、核変換 He 効果を調べるための模擬照射手段としての Ni 添加法の妥当性を検討した。
- 第 4 章では、そもそも He の存在により低放射化マルテンサイト鋼の脆化が促進されるのかどうか、という問題に着目した。そのために、He 生成を促進する添加元素を加えることなく多量の He を材料中に導入することが可能である、サイクロトロン He 注入を行った試料に対して、微小試験片技術のひとつであるスモール・パンチ試験を用いて、延性脆性遷移挙動の評価を行った。また、He と点欠陥との相互作用を調べ、He 注入が微細組織発達過程に与える影響について調べた。
- 第 5 章では、低温から高温へのステップ状温度変動照射や、その繰り返しによる交番照射を行い、低放射化マルテンサイト鋼の微細組織や照射硬化に及ぼす温度変動照射の影響を調べ、温度変動照射下での点欠陥集合・離散過程と機械的特性変化の相関を明らかにすることにより、損傷組織発達の素過程について調べた。
- 第 6 章では、数 10dpa に及ぶ FFTF/MOTA 照射した低放射化マルテンサイト鋼と、その照射の熱履歴を模擬した時効材における炭化物や Laves 相の析出挙動の比較をすることによって、相安定性に及ぼす中性子重照射の影響を調べた。
- 第 7 章では、第 6 章までの実験結果に基づいて、照射硬化の照射量依存性や温度変動照射下における I-cluster と V-cluster の役割を明らかにするために、反応速度論を用いたモデルを構築して、損傷組織発達過程を調べた。

第2章 実験方法

2.1 試料

2.1.1 化学組成と熱処理

本研究で用いた低放射化マルテンサイト鋼の化学組成と熱処理を表 2.1.1 に示す。我が国の大学を中心に広範な研究が行われている JLF-1 を初めとして、全て 9%Cr-2%W-0.1%C を基本組成とするマルテンサイト単相組織からなる鋼である。JLM-1 は焼入性と靱性の改善のため、また核変換ヘリウムの影響を調べるために、ホウ素を添加した鋼種である。JLM-2 は、JLM-1 に Al を添加し、高温強度特性の改善を目的とした鋼種である。Mod. JLF-1/LSM は、鉄鋼に脱酸材として含まれている Si や Mn を低減することにより、耐粒界脆化特性の改善を狙った鋼である。Mod. JLF-1/LSM/Ni は、Mod. JLF-1/LSM に 1%の Ni を添加し、核変換ヘリウムの影響を調べることを目的とした鋼種である。

表2.1.1 用いた試料の化学組成と熱処理

Chemical Compositions (mass%)

	C	Si	Mn	P	S	Ni	Cr	V	Ti	W	Ta	B	N	Al
JLF-1 ¹	0.10	0.05	0.45	<0.005	<0.005	-	9.00	0.20	-	2.00	0.080	<0.0010	0.025	-
JLM-1 ²	0.10	0.042	0.53	0.002	0.0014	-	9.03	0.26	0.021	2.06	0.051	0.0032	-	-
JLM-2 ²	0.10	0.050	0.53	0.002	0.0020	-	8.98	0.25	0.018	2.01	0.059	0.0029	-	0.028
Mod. JLF-1 ³	0.12	0.10	0.52	0.004	0.0017	0.02	8.98	0.26	0.04	2.07	0.070	-	-	-
Mod. JLF-1/LSM ³	0.12	0.01	0.01	0.003	0.0017	0.02	8.91	0.26	0.05	2.03	0.069	-	-	-
Mod. JLF-1/LSM/Ni ³	0.10	0.01	0.01	0.004	0.0014	1.00	8.92	0.26	0.04	2.02	0.069	-	-	-

Heat Treatments:

¹ normalized at 1323 K for 30 min and then tempered at 1048 K for 1 h, followed by air cooling.

² normalized at 1323 K for 30 min and then tempered at 1033 K for 1 h, followed by air cooling.

³ normalized at 1323 K for 30 min and then tempered at 1023 K for 1 h, followed by air cooling.

2.1.2 試験片作製

熱処理後の試料から、0.25mmもしくは0.15mm厚の板材をマルチワイヤーソーにより切り出し、微小引張試験片やTEM用ディスク試験片を打ち抜いた。引張試験片は、図 2.1.1(a)に示すように、平行部長さ5mm、幅1.5mm、厚さ0.25mmのSS-Jタイプと呼ばれる微小試験片である。TEMディスクの形状は、直径3mm、厚さ0.15mmである。打抜材は、粒度1500番

のエメリ紙により研磨後、(フッ酸+過酸化水素水+蒸留水) 溶液による化学研磨を行った。シャルピー衝撃試験用試料は放電加工により作製され、図 2.1.1(b)に示すよう、に 1.5mm サイズ (1.5mm×1.5mm×20mm) と呼ばれる V ノッチ (切り欠き角度 30° , 切り欠き底部の半径 0.08mm) 付きの微小試験片である。

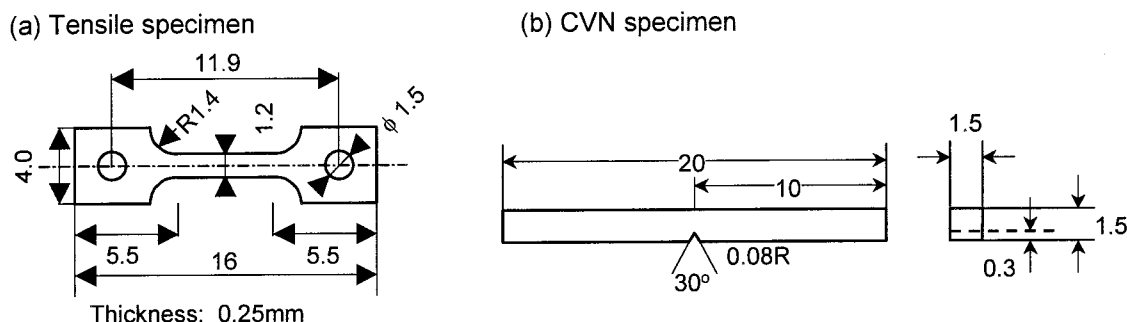


図2.1.1 本研究で用いた試験片形状。(a)引張試験片, (b)シャルピー衝撃試験片

2.2 照射方法

本研究では、原子炉を用いた中性子照射と、サイクロトロン加速器を用いた α 粒子照射を行った。以下に各装置の概説を行う。

2.2.1 JMTR 照射

本研究における中性子照射試験の大半は、日本原子力研究所・大洗研究所の JMTR (Japan Material Testing Reactor) で行った。JMTR は軽水減速・軽水冷却のタンク型で熱出力 50MW の材料試験炉である。わが国での原子炉による中性子照射研究は 1960 年代から始まったが、1980 年代後半にそれまでの照射温度制御の問題点が指摘された。従来型と呼ばれるその制御方式は、原子炉内での γ 線加熱を熱源とし、断熱層の熱伝導度を可変制御することにより平衡させる方法であり、原子炉出力と独立に温度を制御することは困難であった。その結果、図 2.2.1 のように原子炉立ち上げ時や運転終了時に目標温度より低温で照射され、損傷蓄積過程に大きな影響を

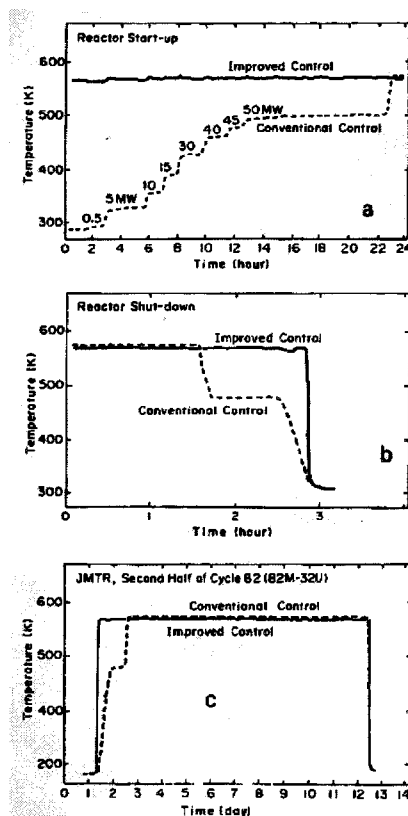


図2.2.1 JMTRの従来型と改良型の温度制御照射における熱履歴[93]

与えることが示された[93]。また、同一原子炉においても燃料分布や制御棒位置の変化により中性子環境が大きく異なる場合があるため、系統的な研究を困難にしていた。

これらの問題点を解決するために、JMTRを用いた改良型温度制御照射と呼ばれる方法が開発された。改良型温度制御照射では試料の加熱をγ線のみならず、炉心に挿入するキャプセル周囲にヒーターを配置することによって炉心外からの温度制御が可能になった。また、照射リグを図2.2.2のように多段型にし、それぞれの段を独立に温度制御することにより、同一照射場で異なる照射温度を設定することが可能になった。さらに、多分割型のキャプセルを使用することによって、原子炉運転中に照射した試料を炉心外に移出することが可能になった[94]。

照射条件の詳細は各章にて述べる。

2.2.2 ATR 照射

ATR は米国 INEEL (Idaho National Engineering and Environmental Laboratory) に設置された、軽水減速・軽水冷却の材料試験炉である。ATR は 1967 年に運転を開始して以来、材料照射試験や医療用放射性同位元素の生成などに用いられている。図2.2.3のように炉を上方から見たとき、ATR 燃料領域は四つ葉のクローバーと類似した形に見えるため、それぞれの部分はローブ (葉) と呼ばれる[95]。照射試験は、独立のフロー、および、温度コントロールを持つそれぞれのフラックス・トラップに挿入されたテストループ、もしくは反射体照射ポジションにおいて行われる。最大全熱出力は 250MW であり、各ローブに関しては通常 50MW である。

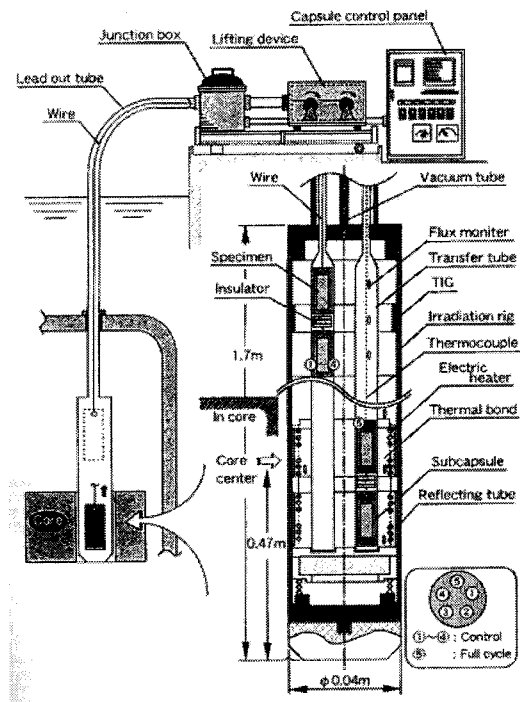


図2.2.2 JMTR改良型温度制御照射システムの構成[94]

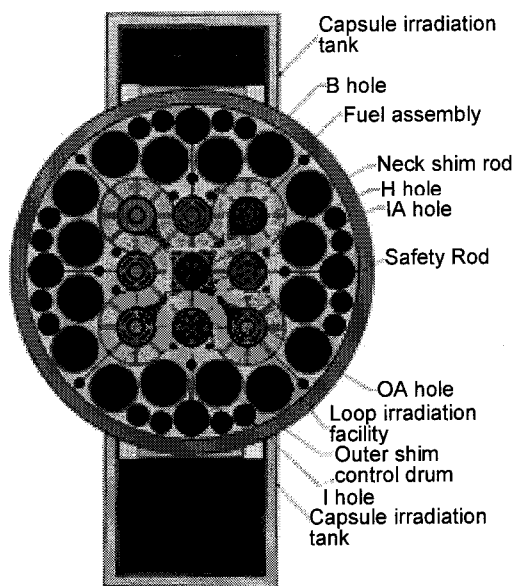


図2.2.3 ATRの炉心構造[95]

本研究で行われた照射実験は、日米協力研究（JUPITER 計画）の一環として行われ、ATR-A1 照射と呼ばれている。照射条件の詳細は第 3 章にて述べる。

2.2.3 FFTF/MOTA 照射

FFTF (Fast Flux Test Facility) は、米国ワシントン州ハンフォードに設置された、熱出力 400MW の高速実験炉 FTR (Fast Test Reactor) を中心とした実験施設である。日米科学技術協力研究（FFTF/MOTA 計画）において、1987 年から 1992 年の FTR の運転休止までの間に、開放型材料試験装置 MOTA (Materials Open Test Assembly) を利用した高速中性子照射が行われた。MOTA は、試験片を収納する円筒状のキャニスターがちょうどバナナの房のように 6 個ずつ 8 段に取り付けられており、優れた温度制御特性 ($\pm 5^{\circ}\text{C}$) を持つ[96]。

照射条件の詳細は第 7 章にて述べる。

2.2.4 サイクロトロン照射

低放射化マルテンサイト鋼の微細組織・機械的特性に及ぼすヘリウム効果を調べるために、サイクロトロン加速器による高エネルギー・ヘリウム注入実験を行った。用いた加速器は、東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター (CYRIC) に設置された AVF サイクロトロンである。本 AVF サイクロトロンの最大加速エネルギーは、陽子：40MeV、重陽子：25MeV、ヘリウム-3 粒子：65MeV、アルファ粒子：50MeV である（現在は、100MeV 級に更新中）。材料照射試験は、放射化の影響を避けるため独立の部屋にビームラインを引き入れることによって行われている（図 2.2.4 参照）[97]。

照射条件の詳細は第 4 章で述べる。

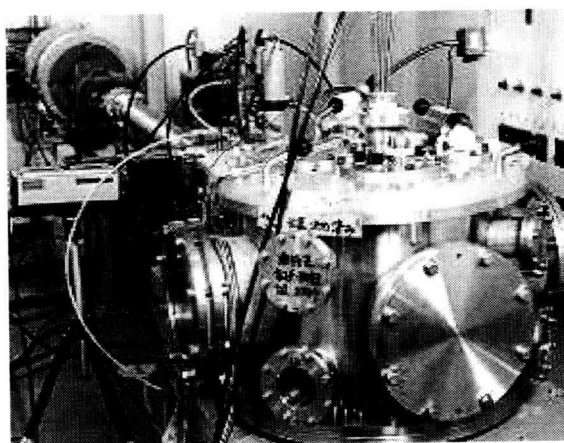


図2.2.4 東北大学CYRICサイクロトロンの材料照射設備[97]。

2.3 組織観察

2.3.1 微細組織観察

照射による損傷組織の発達過程を調べるために、透過型電子顕微鏡(TEM: Transmission Electron Microscopy)による微細組織観察を行った。用いた試料は直径 3mm のディスク試験片である。フェライト鋼は強磁性体であるために、試験片の磁場により電子ビームが曲げられ、観察に著しい困難を伴う。よって、試験片体積を出来る限り小さくするために、本研究で用いた試料の厚さは 0.15mm とした。TEM による観察を行うためには、電子の物質透過能が低いため、試料を薄膜化する必要がある。本研究では、ストルアス社のテスポール 3 を用いたツイングジェット電解研磨法によって観察用試料を作成した。電解研磨液は過塩素酸+酢酸 (1:19) 溶液を、使用温度 13℃にて用いた。電圧は、使用装置に応じて 30~90V の間で調整した。

鉄鋼中の炭化物等の析出相を調べる手法のひとつに、抽出レプリカ法がある。本研究では、時効材や照射材における析出形態変化を調べるために、TEM ディスクから以下のような手順でレプリカ試料を作製した。

① 表面研磨

- a) #1500 までのエメリ紙で研磨
- b) ダイヤモンドペーストを使用して、粒径 9, 6, 3 μm の順にバフ研磨
- c) 0.3 μm のアルミナ粉末を用いて振動研磨

② 第一回腐食

- ・ ガラス板上に試料を固定し、ビレラ溶液 (硝酸: 塩酸: グリセリン=1:2:3) により綿棒を用いて腐食

③ カーボン蒸着

- ・ 真空中で、カーボンを試料表面に蒸着

④ 第二回腐食

- ・ 試料を外し、ビレラ溶液中にて剥離を待つ。外れたものを Cu メッシュで拾い、エタノール、アセトン、イソプロパノールの順で洗浄

上記のように作製した薄膜試料やレプリカ試料は、TEM とそれに付属するエネルギー分散型 X 線分析装置 (EDS; Energy Dispersive X-ray Spectroscopy) を用いて観察・分析がなされた。使用した TEM の主な仕様と使用した装置を表 2.3.1 に示す。東北大学金属材料研究所 α 放射体実験室に設置された TEM には、走査像観察装置 (ASID; A Scanning Image Observation Device) が付置されており、EDS と併せて使用することにより元素分布を測定することが可能である。

表2.3.1 使用した透過電子顕微鏡の設備

設置場所	IAE, Kyoto Univ.	IMR, Tohoku Univ.	PNNL, USA	
使用機種	JEOL JEM-2010EX	JEOL JEM-2010S	JEOL JEM-2000EX	JEOL JEM-1200EX
加速電圧	200 kV	200 kV	200 kV	120 kV
分析機器	EDS	EDS + ASID	EDS	(未使用)

2.3.2 破面観察

後述するシャルピー衝撃試験やスモール・パンチ試験による破壊様式を調べるために、走査型電子顕微鏡 (SEM; Scanning Electron Microscopy) を用いた破面観察を行った。用いた SEM は東北大学金属材料研究所大洗施設に設置された JEOL 社製 JSM-5300 である。破面は活性が高いため、強度試験後アセトンによる洗浄を施し、直ちに観察を行った。

2.4 陽電子寿命測定

陽電子は電子の反粒子であるために、物質中の電子と対消滅を起こし、その際に 2 本の 0.54MeV の γ 線が放出される。この特性を利用した物性評価法が陽電子消滅法である。陽電子消滅法には、陽電子寿命測定、角相関測定、ドップラー・ブロードニング測定の 3 種類の測定法がある。これらの測定法は、金属や半導体中の格子欠陥研究に大きな寄与をもたらし、近年その応用分野は益々広がっている。本研究では、格子欠陥、特に空孔型欠陥の種類の同定とその濃度評価に極めて有効である陽電子寿命測定を用いた。以下にその原理、測定方法、解析方法を示す。

2.4.1 原理

2.4.1.1 陽電子の熱化過程

放射線源から放出された高速陽電子の固体中での stopping profile は、

$$P(x) = \alpha \exp(-\alpha x), \quad \alpha \approx 16 \frac{\rho [\text{g/cm}^3]}{E_{\text{max}}^{1.4} [\text{MeV}]} \text{cm}^{-1}, \quad (2-4-1)$$

で与えられる [98]。ここで、 ρ : 固体の密度、 E_{max} : 陽電子の最大エネルギーを示す。陽電子消滅法のために一般的に用いられている線源である ^{22}Na において、 $E_{\text{max}} = 0.54\text{MeV}$ (平均 0.22MeV) である。よって、 ^{22}Na からの高速陽電子は、鉄中に入射すると、 $1/\alpha \approx 40 \mu\text{m}$ の

深さまで侵入する。高速陽電子の固体中での減速（エネルギー損失）過程は、イオン化と内殻電子の励起によって引き起こされる。陽電子のエネルギー損失速度は、 $1\text{ MeV} > E_+ > 100\text{ keV}$ で約 $1\text{ MeV} / \text{ps}$, $100\text{ keV} > E_+ > 100\text{ eV}$ で $100\text{ keV} / \text{ps}$ である。金属において、より低いエネルギーでは自由電子の励起が支配的になり、プラズモンが生成し、電子-正孔対が形成する。1eV 以下では、フォノン散乱が支配的になる。計算結果によると、陽電子運動量分布は、急速に Maxwell-Boltzmann 分布に落ち着く。これらの過程を、陽電子の熱化と呼ぶ。熱化に要する時間は 300K で 1-3ps であり、典型的な陽電子寿命（数百 ps）に比べ無視できる程度である。

2.4.1.2 陽電子の拡散と移動度

固体中での熱化陽電子の輸送は、拡散理論により示される。Nernst-Einstein の関係式と緩和時間近似を用いて、荷電粒子の拡散係数は、

$$D_+ = \frac{\mu_+}{e} k_B T = \frac{k_B T}{m^*} \tau_{rel} , \quad (2-4-2)$$

と示される[98]。ここで、 μ_+ ：移動度、 k_B ：ボルツマン定数、 T ：温度、 e ：電荷、 m^* ：実効質量、 τ_{rel} ：緩和時間を示す。Bergersen らは、音響型フォノンによる散乱が金属中での支配的過程であることを示し、次のような $T^{1/2}$ 依存性を示した。

$$D_+(T) = D_0 \left(\frac{300\text{K}}{T} \right)^{1/2} \quad (2-4-3)$$

電子による散乱速度は、フォノンによる散乱よりも二桁程度小さい。不純物による散乱は $T^{1/2}$ 依存性を引き起こすが、その影響は低温（<10K）で、高濃度の不純物（～at.%）が存在する場合のみに見られる。金属中における陽電子の拡散係数を計測した実験結果によると、300K において $D_0 = 1-2\text{ cm}^2\text{s}^{-1}$ であり、温度依存性は理論的な $T^{1/2}$ 依存性と良い一致を示している。

準古典酔歩理論（semi-classical random-walk theory）によると、陽電子の拡散係数は、

$$D_+ = \frac{1}{3} v_{th} l_+ , \quad (2-4-4)$$

と与えられる。ここで、 v_{th} ：陽電子の熱的速度、 l_+ ：平均自由行程を示す。 D_0 の実験値より、 $l_+ = 5-10\text{ nm}$ が得られ、理論値と良く一致する。有限の寿命の間に陽電子が拡散する距離は、

$$L_+ = (D_+ \tau)^{1/2} = (100 - 200) \text{ nm} \quad (2-4-5)$$

と求まる。陽電子の熱的波長は、

$$\lambda_{th}^+ = \frac{\hbar}{m^* v_{th}} = 7.6 \frac{m_0}{m^*} \left(\frac{300 \text{ K}}{T} \right)^{1/2} \text{ nm} \quad (2-4-6)$$

と与えられ、300Kでの陽電子の距離に関する特性は以下のようにまとめられる。

$$1/\alpha \approx 50 \mu\text{m} > L_+ \approx 100 \text{ nm} > \lambda_{th}^+ \approx 10 \text{ nm} > l_+ \approx 5 \text{ nm} \quad (2-4-7)$$

2.4.1.3 陽電子の波動関数

陽電子の波動関数は、シュレディンガー方程式、

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \nabla^2 \psi_+(\mathbf{r}) + V(\mathbf{r}) \psi_+(\mathbf{r}) = E_+ \psi_+(\mathbf{r}) \quad (2-4-8)$$

から計算できる[98]。完全周期結晶において、陽電子は $\mathbf{k}_+ = 0$ で、Bloch 状態に非局在化している。ポテンシャルは二つの成分、

$$V(\mathbf{r}) = V_{Coul}(\mathbf{r}) + V_{Corr}(\mathbf{r}) \quad (2-4-9)$$

からなり、第1項は静電クーロンポテンシャル、第2項は局在密度近似における電子-陽電子相関効果を考慮に入れた項である。

正イオン（原子核）からのクーロン力による反発によって、陽電子波動関数は原子どうしの隙間に集中する。陽電子のエネルギー帯 $E_+(\mathbf{k})$ は、放物線状で自由粒子のようになっている。イオンが欠けている場合、もしくはイオン密度が局所的に低い場合、すなわち空孔型欠陥において、陽電子に感じられる反発力は低くなる。その結果、欠陥上に局在した陽電子状態が形成される。

2.4.1.4 陽電子の消滅特性

陽電子の消滅速度(すなわち寿命値の逆数)は、ディラック理論より次式のように与えられる[98]。

$$\lambda = 1/\tau = \pi r_0^2 c \int d\mathbf{r} |\psi_+(\mathbf{r})|^2 n(\mathbf{r}) \gamma[n(\mathbf{r})] \quad (2-4-10)$$

ここで、 r_0 ：電子の古典半径， c ：光速， $n(\mathbf{r})$ ：電子密度， $\gamma[n]$ ：陽電子のまわりに電子が集まってくる効果を示す因子 (enhancement factor) である。この式によって、陽電子位置での電子密度が高いほど、陽電子の消滅速度は速い (寿命が短い) ことがわかる。

陽電子の状態 i において、陽電子は異なる電子密度すなわち異なる寿命値、 $\tau_i = 1/\lambda_i$ を持つことになる。また、空孔型欠陥では電子密度が低いため、トラップされた陽電子の寿命は自由な陽電子 (バルク中で消滅する陽電子) に比べて増加することになる。

2.4.2 測定方法

本研究において陽電子消滅寿命測定を行うのに用いたシステムの構成を図 2.4.1 に示す。陽電子線源として、 ^{22}Na を用いた。 ^{22}Na は NaCl 固体状態でカプトン膜 (マイラー) 内に密封されている。 ^{22}Na は β^+ 崩壊する際に、陽電子とともに 1.275MeV の γ 線を放出する。シンチレーターでこの γ 線 (γ_0) を検出し、この時刻を陽電子の生成時刻とする。これをスタート側と呼ぶ。この後、放出された陽電子はマイラーを両側から挟んだ二枚の試料 (本研究では 3mm ϕ , 0.15~0.25mm 厚) 中で消滅し、0.511MeV の二本の消滅 γ 線 (γ_1, γ_2) が、ほぼ正反対方向に放出される。 γ_1, γ_2 のうちどちらかの γ 線をシンチレーターで検出し、この時刻を消滅時刻とする。これをストップ側と呼ぶ。

スタート側のシンチレーターで検出された γ 線の信号はコンスタント・フラクション・ディスクリミネータ (CFD) に送られ、エネルギーが 1.275MeV であったことが確認されると、そのタイミング信号を時間差波高変換器 (TAC) に送られる。ストップ側では、 γ 線のエネルギーが 0.511MeV であったことが確認された場合に、タイミング信号が TAC に送られる。

TAC では、スタート側とストップ側の入力の時間差を電圧に変換し、その電圧をマルチ・チャンネル・アナライザ (MCA) に出力する。MCA で得られたデータはパソコンに取り込まれ、図 2.4.3 のような陽電子寿命スペクトルを得られる。

本研究での測定時間は 6hour であり約 10^6 カウント計測した。また、システム全体の時間分解能は約 200psec であった。測定温度は室温 (約 20°C) である。

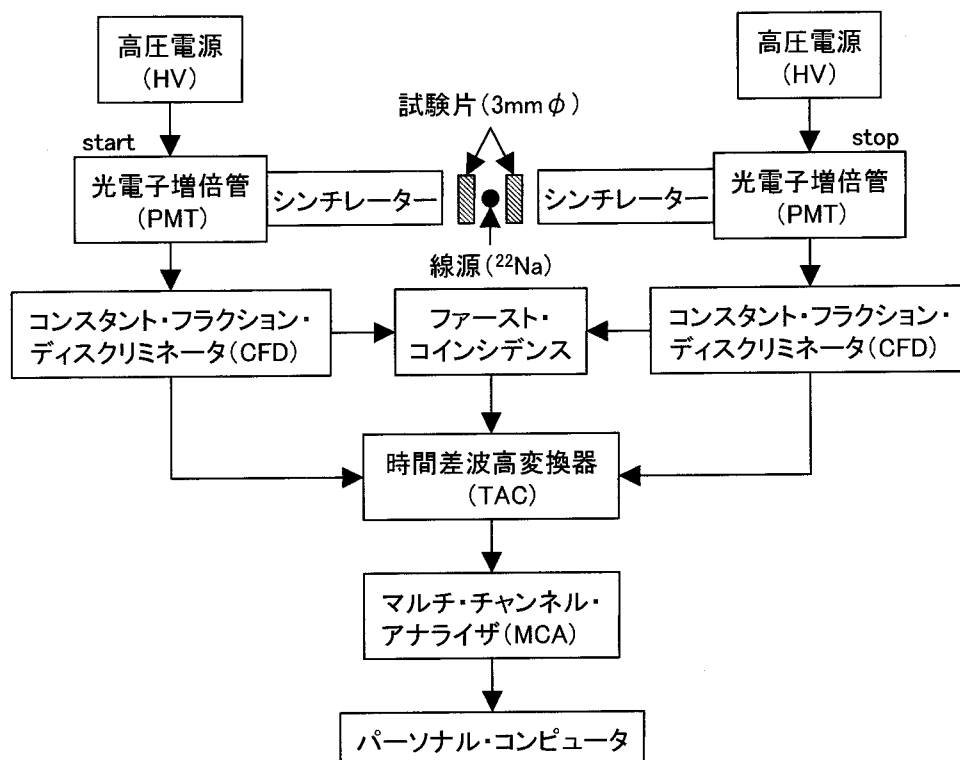


図2.4.1 陽電子寿命測定システム構成

2.4.3 解析方法

2.4.3.1 トラッピング・モデル

陽電子の消滅過程は捕獲模型(トラッピング・モデル)と呼ばれる反応速度式で表せる[98-100]。このモデルは次のような前提に基づいている。

- 時間 $t = 0$ で、全ての陽電子は自由な Bloch 状態である。
- 陽電子はバルク中で空孔型欠陥に出会い、局所化した捕獲状態になる。その速度を κ (捕獲速度) とすると、この κ は欠陥濃度 C_d に比例し、次式のように表される。

$$\kappa = \mu \cdot C_d \quad (2-4-11)$$

ここで μ は比捕獲速度と呼ばれ、例えば鉄の単空孔の場合約 $11 \times 10^{14} \text{ s}^{-1}$ であるから、 $C_d = 10^{-6}$ の原子空孔が存在する場合、 $\kappa = 11 \times 10^{14} \times 10^{-6} \text{ s}^{-1} = 1.1 \text{ ns}^{-1}$ となる。捕獲機構については未解決なところもあるが、例えばアルミの場合についての理論計算の結

果を図 2.4.2 に示す。単空孔から 5 個程度の空孔からなるマイクロボイドまでは、比捕獲速度は体積に比例する(体積捕獲)。それ以上になるとマイクロボイドの半径 R_v に対して πR_v^2 (伝搬模型) や $4\pi R_v D_+$ (拡散模型) の変化を考えると考えられている。

- 陽電子は浅い捕獲の場合(結合エネルギー: $E_b < 0.1\text{eV}$) , 脱出することができる(Detrapping)。ただし, Detrapping は半導体中では重要であるのに対し, 金属中では転位線上で捕獲される時に起こることが考えられるが, 空孔型欠陥に捕獲される場合は考えなくても良い。

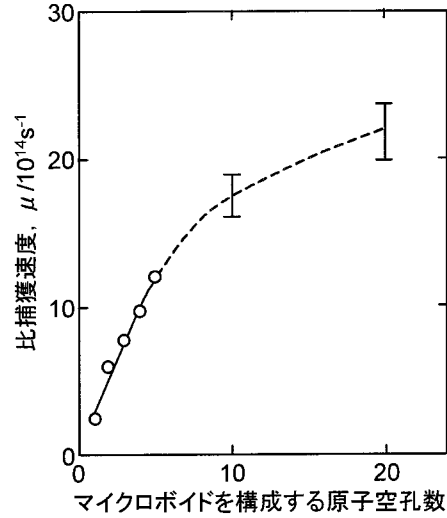


図2.4.2 アルミ中陽電子の比捕獲速度のマイクロボイド寸法依存性[99].

以上のことを前提に、陽電子に関与する欠陥が材料中に一種類しか無い場合の陽電子寿命スペクトル $L(t)$ は、バルク中での消滅速度を λ_B 、欠陥固有の消滅速度を λ_d として、時定数 τ_1 、 τ_2 (寿命に相当する) をもつ次のようなふたつの指数関数に分解される。

$$L(t) = (I_1 / \tau_1) \exp(-t / \tau_1) + (I_2 / \tau_2) \exp(-t / \tau_2) \quad (2-4-12)$$

ここで,

$$\tau_1 = 1 / \lambda_1 = 1 / (\lambda_B + \kappa) \quad (2-4-13)$$

$$\tau_2 = 1 / \lambda_d \quad (2-4-14)$$

$$I_1 = (\lambda_B - \lambda_d) / (\lambda_B + \kappa - \lambda_d) \quad (2-4-15)$$

$$I_2 = 1 - I_1 \quad (2-4-16)$$

となる。また、 κ は上式から,

$$\kappa = (I_2 / I_1) [(1 / \tau_B) - (1 / \tau_2)] \quad (2-4-17)$$

と与えられる。ここで注意すべきは、上式から分かるように、 τ_1 は欠陥が無い場合のバルクの寿命 τ_B より短いことである。 I_2 は κ に比例する量ではないが、 I_2 の増加は κ 、従って欠陥濃

度の増加を意味する。

陽電子寿命測定で得られたスペクトルは、欠陥に捕獲された状態がある際には理想的には式(2)のように指数関数の和になり、図 2.4.3 のように分解できる。実際には、時間分解能が有限なため、負の時間部分にも計測数があり、ピークの左側の形状は分解能関数（ガウシアン）の形が現れる。

実際の解析には、得られたスペクトルに対し、RESOLUTION と POSITRONFIT-EXTENDED[101,102] と呼ばれる重み付き最小2乗法プログラムを用いて、寿命と強度の解析を行った。

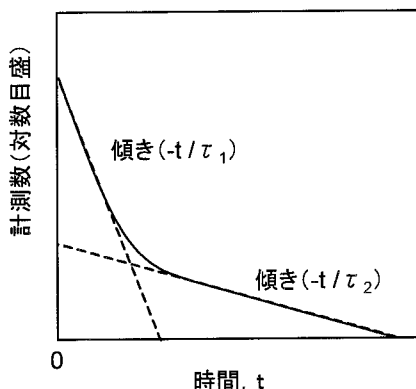


図2.4.3 2種類の陽電子寿命成分 ($\tau_1 < \tau_2$) を含む陽電子寿命スペクトルの模式図 (装置の時間分解能が十分に高い場合) [100].

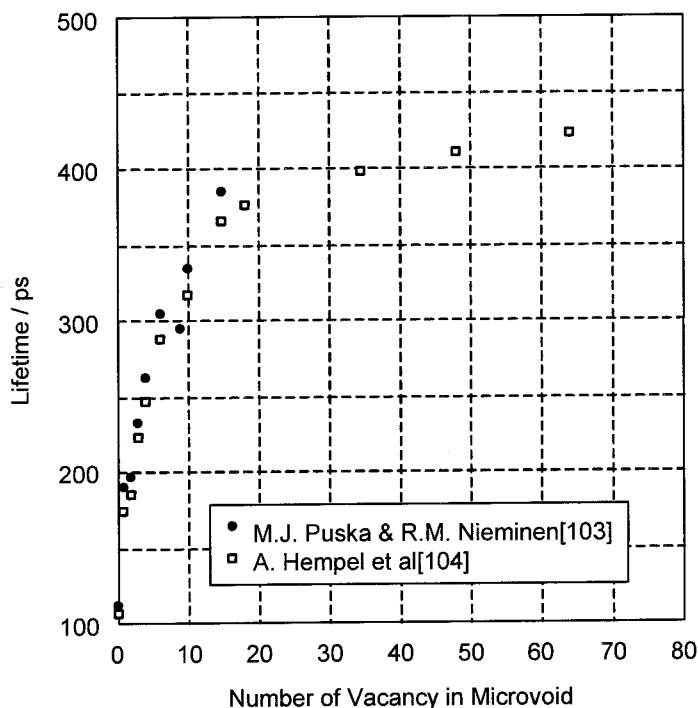


図2.4.4 鉄中の陽電子寿命のマイクロボイド寸法依存性[103, 104]

2.4.4 陽電子寿命の理論計算

ここで、空孔型欠陥に対して陽電子寿命が変化していく過程を示す。図 2.4.4 に鉄中のマイクロボイドに捕獲された陽電子寿命の計算値を示す[103, 104]。マイクロボイドがある程度の大きさになると寿命値は飽和してくるが、これは捕獲機構が体積捕獲から表面捕獲へと変わってきたためであり、マイクロボイド半径が約 0.5nm でほぼ一定の値となる。この時の寿命値は純鉄の場合、約 400~500psec である。また、Kuramoto らによれば、鉄中の

陽電子は、マトリックス中の空孔やマイクロボイド以外にも、図 2.4.5 に示すように転位と相関のある空孔などにもトラップされる可能性があると報告されている[105].

陽電子寿命測定は、ボイド内部にガス原子が存在する気泡(バブル)の測定にも用いることができる。バブル中では表面捕獲が起こるが、内部のガス分子密度が高くなると、表面捕獲陽電子はそれらガス分子の電子と重なりを持ち、陽電子寿命は短くなる。図 2.4.6 にアルミ中のヘリウムバブルに捕獲された陽電子寿命のヘリウム密度依存性を示す[106]。この結果より、バブル内部のガス分子密度を求めることができる。

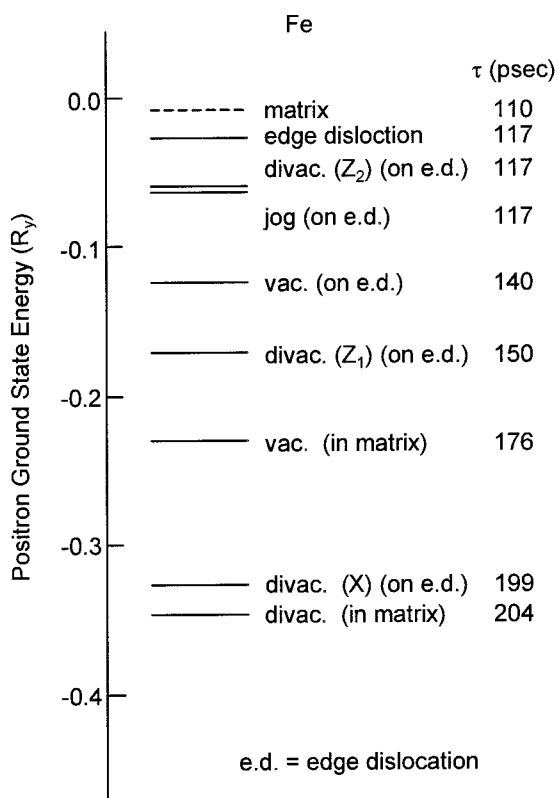


図2.4.5 鉄中の各種欠陥における陽電子の基底状態のエネルギーと寿命の計算結果 (1Ry=13.6 eV, divac. X, Z_1 , Z_2 はそれぞれ転位線に垂直(すべり面内)な配置, 転位線にほぼ平行であるが転位線方向に1原子ほどずれている二つの配置に対応) [105].

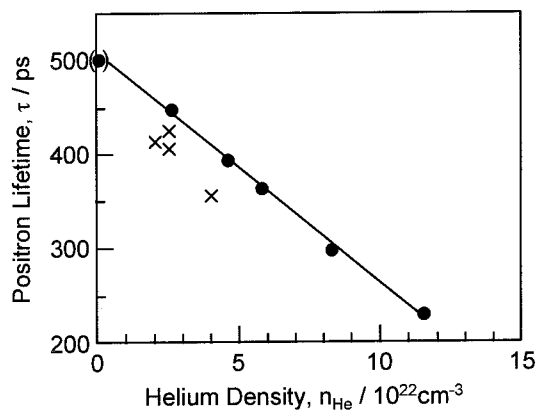


図2.4.6 アルミ中のヘリウムバブルに捕獲された陽電子寿命のヘリウム密度依存性。●は理論計算値, ×は平衡バブル条件を仮定して, バブル寸法の観測値から求めた結果[106].

2.5 微小試験片技術

原子炉を用いた中性子照射試験では、照射体積が限定されるため、試験片の小型化が強く要求される。今後の開発が期待される IFMIF 等の 14MeV 強力中性子源においても同様である。また、試料体積の低減は、放射性廃棄物の減少、照射後試験中の被爆量の低減といった観点からも重要である。小型化した試験片を用いた材料特性評価、特に強度特性評価手法は、総合して微小試験片技術 (SSTT; Small Specimen Test Technology) と呼ばれている。微小試験片技術は、1) 試験片の小型化、2) 特殊試験法の開発、の 2 点に問題が絞られる。また、試験片の小型化に伴う強度特性変化、すなわち寸法効果を明らかにし、標準試験片との相関則を把握しなくてはならない。本節では、本研究で用いた微小試験片技術の概説を示す。

2.5.1 マイクロビッカース硬さ試験

硬さ試験は、浸炭、窒化処理による硬さ分布の評価等のために工業的に広く用いられている手法であり、日本工業標準規格 (JIS) 等にも規定されている (例えば JIS Z 2244, JIS G 0557)。硬さ試験の利点として、1) 非破壊的に検査できる、2) 特別な形状、大きさの試験片が不要、3) 測定時間が短時間である、4) 圧痕測定に個人誤差が生じるが熟練を必要としない、などが挙げられる。硬さ試験には、ブリネル硬さ、ロックウエル硬さ、ヌープ硬さ等の試験があるが、本研究ではビッカース硬さ試験を用いた。ビッカース硬さ試験における圧子形状は対面角 $\theta = 136^\circ$ の正四角錐である。通常、ビッカース硬さ試験における試験荷重は 1~50kgf の範囲であるが、特に荷重を 0.05~1kgf にしたものをマイクロビッカース硬さ試験と呼ぶ。試験荷重 P/kgf の時、圧痕の平均対角線長さ d/mm が得られた際のビッカース硬さ HV は、

$$HV = (2P/d^2) \sin (\theta/2) = 1.8544 P/d^2 \quad (2-5-1)$$

で与えられる。ビッカース硬さの表記法として、一般的には硬さ記号 HV 、硬さ値の順に表示する (例えば $HV250$)。特に試験荷重を表したい時には、 $HV(10)250$ などとする。10 は 10kgf 荷重を示す。

ビッカース硬さ測定用試料の厚さは、鉄系材料においては圧痕の対角線長 d の 1.5 倍以上であることが要求される。これは、圧痕の形成による塑性変形領域に対応しており、アルミニウムや銅系の材料では、 $2.25 \sim 3d$ の厚さが必要になる。この塑性変形領域を避けるために、圧痕の中心間の距離は $4d$ 以上であることが必要とされている。また、圧痕の中心から試料の縁までは $2.5d$ 以上であることが必要とされている。

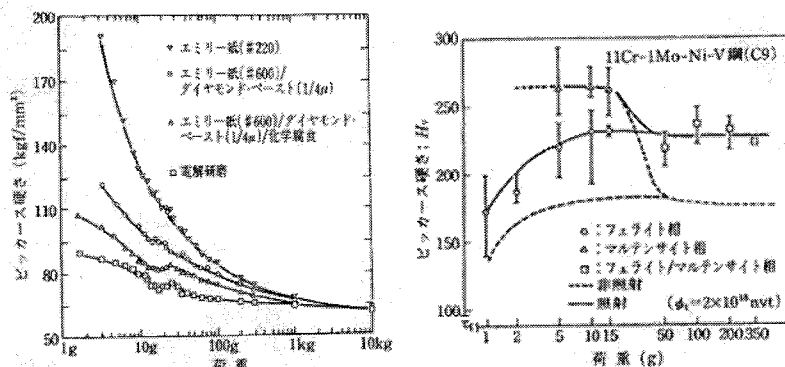


図2.5.1 (a)純鉄におけるビッカース硬さの荷重依存性と表面状態の影響、
(b)フェライト/マルテンサイト2相鋼のビッカース硬さの荷重依存性と照射の影響[107].

ビッカース硬さ試験における荷重の設定を不必要に小さくすると、図 2.5.1 のように見かけの硬さは大きくなる。また、表面が粗いほど見かけの硬さ値は大きくなる。これらの原因として、表面の加工変質層や残留歪み、酸化層など材料における硬さの他に、測定の個人誤差が挙げられる。表に研磨紙の粒度と仕上げ面の粗さの関係を示すが、マイクロビッカース硬さ試験において圧痕測定を行う時、表面は圧痕の角が明瞭に形成される程度滑らかな 0.1S 程度の鏡面仕上げが必要とされている。また、JIS では「その測定値の 0.4% または $0.2\mu\text{m}$ 」を容易に測定できる程度でなければならないとしている。

本研究においては、AKASHI 社製のマイクロビッカース硬さ試験機を用いた。照射試料にさびが付着している場合には、硬さ試験前に粒度 1500 番のエメリ紙を用いて、照射後の試料の表面仕上げを行った。JIS Z 2251 によると、研磨紙仕上げによる加工変質層の深さは約 $1\mu\text{m}$ とされており、この影響を無視できるように、荷重を 0.2kgf とした。また、負荷時間は 15s である。

2.5.2 引張試験

引張試験は 1 軸応力状態での試験であり、降伏応力、引張強さ、伸び、絞り等の情報が得られる。引張試験片の標準寸法は、JIS の規定 (JIS Z 2201) に依れば、1 号から 14 号まであり、比較的小さな 10 号試験片でも、平行部長さ 60mm、直径 12.5mm となっている。これに対して、我が国で核融合炉材料研究のために開発された微小試験片は、図 2.1.1 に示したように、平行部長さ 5mm、幅 1.2mm、厚さ 0.25mm という値になっており、体積比では約 1/5000 という微小化がなされている。

引張試験から得られる諸特性に寸法効果が存在することが、多くの材料について知られ

ている[108]。Y. Kohno らは、JPCA（オーステナイト鋼）と JFMS（フェライト/マルテンサイト 2 相鋼）の微小引張試験片から得られた強度特性の板厚依存性とアスペクト比（試験片幅に対する厚さの比）依存性を詳細に調べている[109]。降伏応力の板厚依存性が見られなくなる臨界厚さは、JPCA において 0.19mm、JFMS で 0.12mm であることがわかる。最大引張応力のアスペクト比依存性が見られなくなる臨界アスペクト比は、JPCA については 0.3、JFMS については 0.18 であり、本研究で用いた試験片に換算すると、それぞれ 0.36mm、0.216mm が臨界厚さである。しかし、降伏応力に比べ最大引張応力の板厚依存性はばらつきが非常に大きいことに注意しなければならない。均一伸びに関しての臨界アスペクト比は、JPCA で 0.4、JFMS で 0.5 と得られ、臨界厚さに換算するとそれぞれ、0.48mm、0.6mm である。

引張試験によって得られる強度特性の寸法効果について、Matsui の総説によれば、結晶粒径の影響が挙げられている[110]。多結晶材料の試験片断面には、有限の数の結晶粒があり、隣接する結晶粒間ですべり方向、すべり面ともに異なる。つまり、各結晶粒は互いに拘束されながら変形することになる。結晶表面ではこの拘束はないため、表面に面している結晶粒の割合が、ある試験片断面にある全結晶粒に対して大きくなれば、変形がより容易になると考えられる。しかし、降伏直後では、粒界での整合歪みがあまり大きくなっておらず、変形した粒を中心とした比較的小範囲の粒だけが歪みの緩和に寄与していると考えられるため、降伏応力の板厚依存性が小さいと考えられるとしている。一方、塑性変形が進んだ状態では、薄片化による塑性不安定性の促進が生じるため、最大引張応力、均一伸びの板厚依存性のばらつきが大きいと考えられるとされている。

以上の結果と考察から、本研究での微小試験片を用いた引張試験から得られる情報の中で工学的に信頼できるものは降伏応力のみであると結論づけた。よって、微小試験片の板厚はフェライト鋼における降伏応力の評価には十分な厚さである 0.25mm という値を用いた（図 2.1.1）。ただし、その他の情報も参考のために評価した。

本研究で用いた引張試験機は、東北大学金属材料研究所大洗施設に設置された INTESCO 社製試験機と、PNNL に設置された INSTRON 社製試験機である。前者における試験温度は全て室温であり、後者では室温と照射温度で試験を行った。クロスヘッド速度は 0.2mm/min とし、歪速度に換算すると $6.7 \times 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ である。

2.5.3 シャルピー衝撃試験

衝撃試験は、原子炉圧力容器鋼における照射脆化の監視試験（サーベイランス試験）として広く行われ、JIS 等で規格が設定されている（JIS B7722, JIS Z2242 等）[13]。規格試験においては標準化された振り子型試験機が用いられているが、微小試験片に関する標準化された試験法は無いため、ドロップタワー型の衝撃試験機が広く用いられている。ド

ロップタワー型試験機は、試験中の温度変化が生じにくい構造になっているため、微小試験片を用いた衝撃試験に適している。

延性脆性遷移温度 (DBTT) は、衝撃試験による材料の破壊に要したエネルギー (吸収エネルギー) の試験温度依存性を調べることによって求められる。図 2.5.2 にフェライト鋼における吸収エネルギーの温度依存性の模式図を示す。高温度域では延性を示すため、吸収エネルギーが大きく一定であり、これを上部棚エネルギー (USE; Upper Shelf Energy) と呼ぶ。温度の低下に伴い吸収エネルギーが低下していく領域を遷移領域と呼び、延性から脆性への遷移に対応している。さらに試験温度が低下すると、一定で最小の吸収エネルギーを示すようになり、この領域では完全に脆性挙動を示す。この時の吸収エネルギーを下部棚エネルギー (LSE; Lower Shelf Energy) と呼ぶ。DBTT の定義は、原子炉压力容器鋼の監視試験においては、JIS 等の規格により吸収エネルギーが 41J (30ft-lb) に対応する温度を DBTT としている。これは、延性脆性遷移曲線において 41J に対応する温度が、不安定性破壊に起因する無延性遷移温度と良く対応するためである。しかし、微小試験片を用いた試験においては、このような相関関係が不明であることと、異なる材料どうしを比較する場合において問題があるため、DBTT は「USE と LSE の平均値をとる温度」と定義されている。この定義は核融合炉構造材料研究において広く用いられており、相互の比較のために本研究においてもこれを採用した。

図 2.5.2 に示したように、微小試験片を用いた場合の延性脆性遷移曲線、そして USE や DBTT は、標準試験片を用いた場合のそれらとは異なることが良く知られている。このような延性脆性遷移挙動の試験片寸法依存性はサイズ効果と呼ばれ、核融合炉構造材料の研究・開発のみならず、原子炉の寿命評価の観点からも多くの研究が報告されている。USE や DBTT の規格化に関しては、Hu[111], Louden[112], Corwin[113, 114], Kurishita[115]らがそれぞれ、体積規格に応力集中係数等を取り入れて試みてはいるが、標準的な方法は未だ確立されていない。

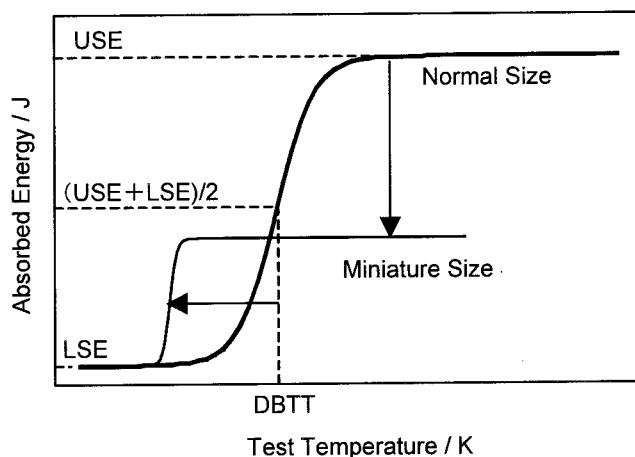


図2.5.2 延性脆性遷移温度とサイズ効果の模式図

本研究では、1.5mm 角微小試験片を用いてシャルピー衝撃試験を行った。用いた装置は、東北大学金属材料研究所大洗施設に設置された油圧式ドロップタワー型計装化シャルピー衝撃試験機である。衝撃変形速度は 5m/s に設定した。試験片を固定するアンビル間のスパンは 12.5mm とした。試験温度が室温以下の際には、冷媒としてイソペンタンを用いて試料を冷却した。試験温度が室温以上の際には、シリコンオイルバス中で試験片を加熱した。

衝撃吸収エネルギーは、荷重-変位曲線の下側面積を計算することによって求めた。

DBTT および USE の解析は、JEAC4201 の規定に則り、次式に示す関数を用いてフィッティングを行うことにより評価した。

$$E = a + b \tanh ((T-T_0) / c) \quad (2-5-2)$$

ここで、 E ：吸収エネルギー、 T ：試験温度、 a 、 b 、 c 、 T_0 ：回帰係数である。これらの回帰係数から、 $a+b$ を USE、 T_0 を DBTT と評価した。

2.5.4 スモール・パンチ試験

シャルピー衝撃試験における試験片サイズは、報告されている最小のものでも $1\text{mm} \times 1\text{mm} \times 20\text{mm}$ であり [115]、原子炉照射試験においては照射体積の大部分を占めることになるばかりでなく、サイクロトロンなどの大型加速器を用いた照射試験にとってはこれでも大きすぎる。延性脆性遷移挙動を評価するために、更なる試験片の微小化を検討し開発された試験法がスモール・パンチ (SP) 試験である。

SP 試験は、 $3\text{mm} \phi$ の TEM ディスク試験片、

もしくは $10\text{mm} \times 10\text{mm}$ のクーパーン試験片を用いて行われる。これらの試験片を図 2.5.3 に示す上部ダイスと下部ダイスで固定し、鋼球を介して試験片にバルジ変形を与える。SP 試験における変形挙動は複雑であるため、応力状態についての詳細は不明であるが、Baik らによって図 2.5.4 のように荷重-たわみ曲線の説明がなされている [116]。SP 試験による押し込み変形時の挙動は、①弾性曲げ段階、②塑性曲げ段階、③塑性膜伸び段階、④塑性不安定性段階に分けられる。①、②の段階での破断は脆性破壊に、③、④の段階での破断は延性破壊に対応している。この時に得られた荷重-たわみ曲線の下側面積を SP 破断エネルギーと定義し (図 2.5.4)、その試験温度依存性から SP-DBTT を決定する。

SP 試験の利点としては、1 軸の荷重を加えることにより、試験片に 2 軸引張応力を与えることが出来るため、引張試験に比べてサイズ効果の低減が期待できるとされている [117, 118]。また、破断部の絞りから破壊靱性値の推定が可能との報告もある [119]。

種々のフェライト鋼に対する SP 試験とシャルピー衝撃試験における DBTT の比較研究により、前者 (SP-DBTT) と後者 (CVN-DBTT) の間には、図 2.5.5 のように鋼種に依らない一定の相関があることが経験的に求められており [120]、

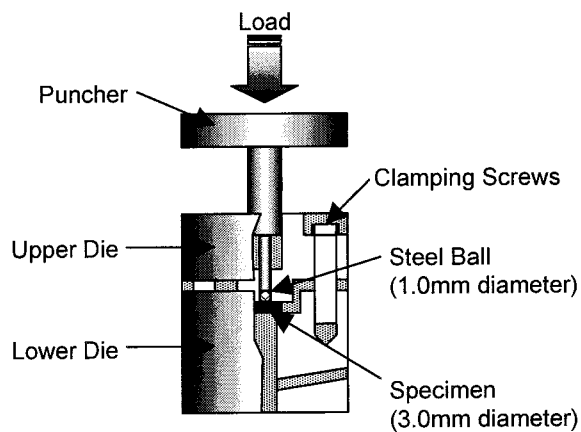


図2.5.3 SP試験に用いた治具の構成。

$$\text{SP-DBTT} = \alpha \times \text{CVN-DBTT}$$

(2-5-3)

という関係において、 $\alpha=0.4$ [120], 0.41 [117]という値が得られている。

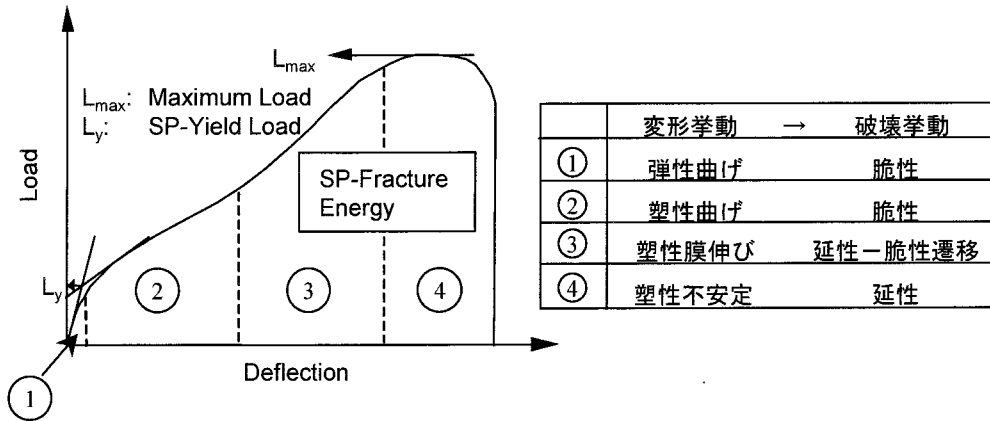


図2.5.4 SP試験における変形挙動の遷移[116].

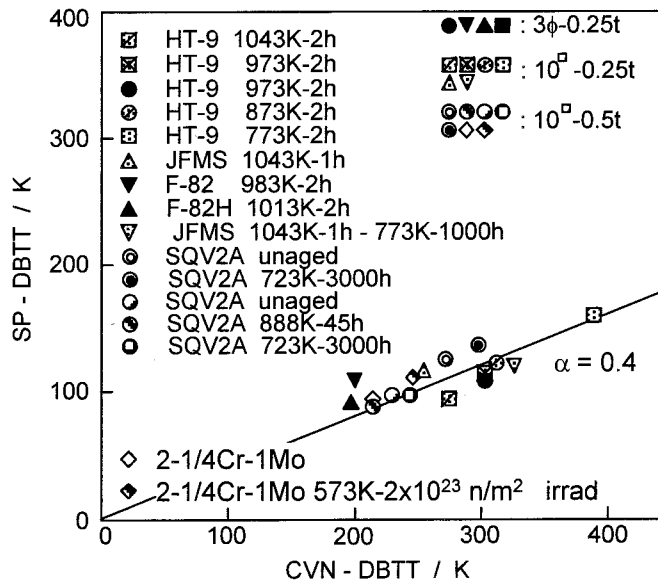


図2.5.5 標準サイズCVN試験片によるDBTT (CVN-DBTT) と、SP試験によるDBTT (SP-DBTT) との相関 [120].

本研究における SP 試験は、東北大学金属材料研究所大洗施設におけるインストロン社製万能試験機によって、図 2.5.3 の治具のパンチャーを圧縮することによって行われた。クロスヘッド速度は 0.2mm/min 、試験温度は 77K ～室温（冷媒：イソペンタン）である。SP 試験によって得られた荷重-変位曲線はチャート紙に出力された。これを、スキャナを用いて画像データとしてコンピュータに取り込み、Data ThiefTM を用いて数値データに変換した後、OriginTM を用いて積分し、SP 破断エネルギーを求めた。

第3章 低放射化マルテンサイト鋼における照射効果の照射量・

照射温度依存性とニッケル添加効果

3.1 緒言

3.1.1 低放射化マルテンサイト鋼の照射硬化挙動

HFIR や FFTF/MOTA を用いた数 10dpa までの照射により，低放射化マルテンサイト鋼の中性子照射硬化は，照射温度が約 420°C より低い場合に顕著に生じることが報告されている[40]．これらの照射硬化の原因として，格子間原子型転位ループや照射誘起析出物の形成が挙げられている．一方，JMTR, HFIR 等による低照射量域では，照射温度が低い場合，微細組織に変化が見られないにも関わらず，比較的大きな照射硬化が見出されている[41]．このような照射硬化の原因として，Abe らはカスケードにより直接形成された空孔型転位ループと炭素-空孔複合体の影響を挙げている[43, 44, 121]．

照射硬化因子として考えられているものを列挙すると以下のようなになる．

- i) 点欠陥(point defect)：空孔(vacancy)，自己格子間原子 (self-interstitial atom)
- ii) 転位ループ(dislocation loop)：空孔型，格子間型
- iii) マイクロボイド (micorovoid)
- iv) 転位ネットワーク (dislocation network)
- v) キャビティ(cavity)：ボイド (void)，ガス気泡(bubble)
- vi) 析出物(precipitate)：炭化物 (carbide)，金属間化合物(intermetallic compound)等
- vii) 核変換生成物(transmutation products)
- viii) 不純物原子(impurity atoms)
- ix) 偏析(segregation)
- x) 上記の複合体 (complex)：炭素-空孔複合体(C-V complex)等

通常，転位ループやキャビティなどの二次欠陥による硬化は，析出硬化を説明するオロワン・モデルを応用して説明される (Appendix 2 参照)．すなわち，照射によって生じた硬化因子は，運動転位の障壁として働くと考えられている．一方，近年 Singh らは，分子動力学 (MD; Molecular Dynamics) 法を用いた計算結果により存在が指摘されている 1 次元すべり運動をする微小格子間原子集合体による運動転位の固着効果について議論しており，

カスケードによって直接形成された微小な可動 (glissile) 転位ループが運動転位 (grown-in dislocation) をデコレートすることによって固着し、硬化を生じさせるといふ、いわゆる「カスケード誘起ソースハードニング」(CISH; Cascade-Induced Source Hardening) モデルを提唱した[122, 123].

通常、照射硬化挙動は引張試験や硬さ試験などによって得られた降伏応力や硬さによって調べられ、TEM 等による微細組織観察結果と結びつけて考えられることが多い。しかし、強磁性体であり、かつ複雑な微細組織を有するフェライト系鉄鋼材料においては、このようなプロセスに著しい困難が生じる。実際に、1dpa 未満での低損傷量域において、微細組織に明確な変化を見出した例は少ない。軽水炉圧力容器鋼の照射脆化研究においては、サーベイランス試験等のデータベースから統計的解析手法を用いて劣化予測式の導出を行っている[124, 125]。しかし、現実には核融合炉が存在しない状況で、この種の方法を採用することは危険性を伴う。よって、照射損傷組織発達とそれに伴う照射硬化の機構論的解釈が必要である。

3.1.2 低放射化マルテンサイト鋼の照射脆化に及ぼすニッケル添加の影響

低放射化フェライト鋼の He 脆化に関しては、各研究グループにおいて、その解釈が著しく異なっている。その理由としては、第1章で示したように、採用した He 生成法によって脆化挙動が異なり、いずれの方法においても核融合環境模擬試験法として問題を有しているためである。このような状況で、比較的多くのデータを提供しているのが、Ni 添加法を用いた研究である[56-63]。それらの研究によると、図 3.1.1 に示すように Ni 同位体を添加した 9Cr-1MoVNb 鋼において Δ DBTT が最大約 200°C にも及ぶ著しい照射脆化が観察された[56]。この原因として、Klueh らはそれを核変換 He によるキャビティ形成から生じた粒界割れの影響と結論付けた。しかし、フェライト鋼に対する Ni の添加は、微細組織ひいては強度に影響を及ぼすことが考えられる。また、フェライト鋼中においてアンダーサイズ原子であると考えられる Ni の添加が、照射下組織発達過程において重要な変化を引き起こすことは充分予測される。よって、この結果を解釈するに当たっては、照射脆化に及ぼす Ni そのものの影響を明確に示なくてはならない。

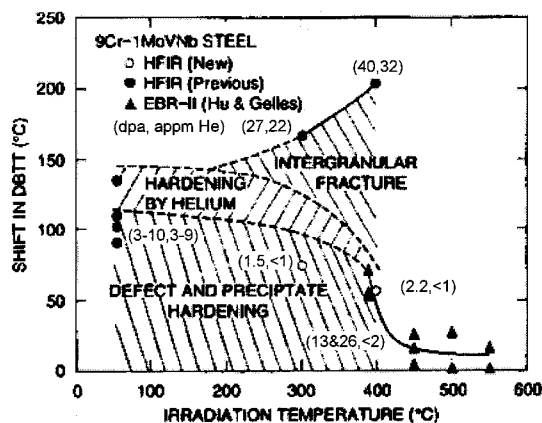


図3.1.1 HFIR, EBR-II照射した9Cr-1MoVNb鋼におけるDBTTシフト量の照射温度依存性。Ni添加法によってヘリウムを生成している[56]。

3.1.3 目的

1dpa 以下での照射による損傷組織は TEM による観察が極めて困難であるが、数 10dpa で観察される転位ループやボイドなどの組織発達機構に連続的につながるモデルの構築を目指すためにも、損傷組織発達初期過程の解明は必要である。また、照射損傷組織の発達過程は、材料の種類もさることながら、照射粒子エネルギー、照射量、損傷速度、照射温度などの照射条件に敏感に依存するため、よく制御された照射場での試験の必要性が指摘されている。本章では、先ず照射硬化の照射量・温度依存性の評価とともに、陽電子寿命測定を行うことにより、空孔型欠陥集合体の挙動を調べ、照射硬化との相関を明らかにすることを第一の目的とする。次に、Ni 添加による He 生成量が充分少ない JMTR や ATR による照射を行い、微細組織発達、照射硬化・脆化に及ぼす Ni 添加の影響を調べ、核変換 He 効果を調べるための模擬照射手段としての Ni 添加法の妥当性を検討することを第二の目的とする。

3.2 実験方法

3.2.1 照射試験

3.2.1.1 JMTR 照射

本研究では、JMTR の改良型温度制御照射（第 2 章参照）を中心に、1994～1998 年に渡り多くの照射実験を行った。以下にそれらの照射履歴を述べる。

1) 94M-15U

94M-15U 照射は JMTR サイクル 114 において実施され、多段多分割照射リグを使用して、照射サイクル期間中に照射場から一部の試料キャプセルの引上げを行った。使用した照射孔は Be 反射体領域内の F-11 である。照射温度は 220℃一定であり、原子炉起動・停止時の低出力下においても一定温度に保たれた。高速中性子 ($>1\text{MeV}$) フルエンスは最大 $1.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ であり、弾き出し損傷量に換算すると 0.15dpa であった。この時の照射時間は 591.5 h であり、高速中性子フラックスは $4.7 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$ であり、損傷速度は $7.0 \times 10^{-8} \text{ dpa/s}$ と計算された。照射途中 2 回引上げられた試料についての照射条件は、図 3.2.1 に示す通りである。また、一部の試料に関しては、引上げ時に反射体のすぐ外側で留まり、完全に照射場から逸脱しなかった。引上げまでの照射量は 0.01dpa であったが、これ以後の正確な照射条件は不明である。この時の照射温度に関しては、 γ 線からの加熱のみであり、冷却水温度以上であることを考えると、80℃～170℃程度の温度が予測される。ここでは、照射温度 $<170^\circ\text{C}$ とした。また、この時の高速中性子フルエンスは、フラックスの分布図から

判断すると[126]，炉内照射時の半分程度であることが予測される．よって，照射量は0.07dpa 程度が見込まれるが，ここでは<0.15dpa と記す．

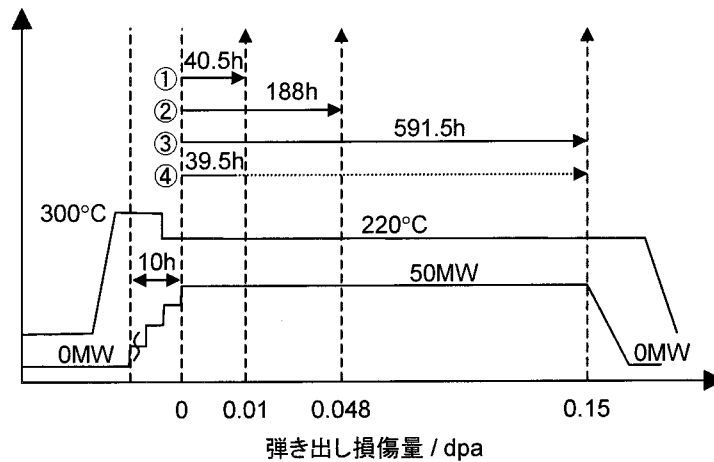


図3.2.1 JMTR94M-15Uにおける照射履歴．

2) 96M-25U, 26U

96M-25U, 26U 照射は，照射量をほぼ同一にして，中性子フラックスが異なる条件のもとで実施された．96M-25U 照射は，照射孔 0-10 を用いて JMTR サイクル 121 にて行われた．96M-26U 照射は，照射孔 R-5 を用いて JMTR サイクル 120-122 の 3 サイクルで行われた．照射温度は，改良型温度制御のもとで 290°Cであった．照射条件を表 3.2.1 に示す．

表3.2.1 JMTR96M-25U, 26Uの照射条件．

Irradiated in the JMTR	96M-25U	96M-26U	(units)
Temperature	290	290	°C
Dose (E>1 MeV)	1.05×10^{22}	9.3×10^{21}	n/m ²
Dose (dpa)	1.58×10^{-3}	1.40×10^{-3}	dpa
Irradiation period	97.4	1728	hour
Dose rate (E>1 MeV)	3.0×10^{16}	1.5×10^{15}	n/m ² s
Dose rate (dpa)	4.5×10^{-9}	2.2×10^{-10}	dpa/s

3) 94M-13U

94M-13U 照射についての詳細は第 4 章で示す．本章では，340°C照射のデータを使用した．

4) リーキー・キャプセル照射

リーキー・キャプセルを用いた 80℃照射を行った。これは、冷却水と試料が接触した条件での照射であるため、ほぼ冷却水温度での照射が可能になる。高速中性子フルエンスは 4.0×10^{18} , 7.0×10^{19} n/cm² の 2 条件であり、それぞれの弾き出し損傷量は、0.006dpa, 0.11dpa である。

3.2.1.2 ATR 照射

JMTR で 1dpa を超える照射量を得るのは困難なため、米国の ATR (Advanced Test Reactor) を用いた中性子照射も併せて行った。

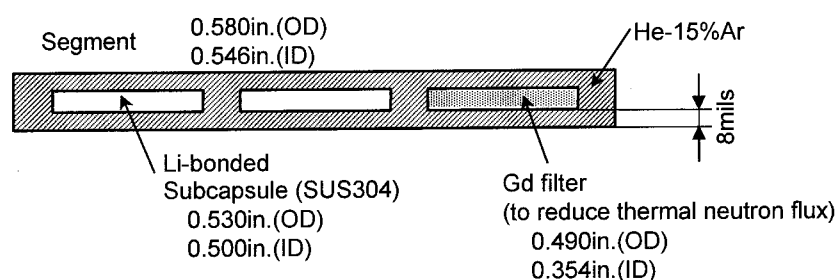


図3.2.2 ATR-A1照射に用いた照射キャプセルの構成

照射用試料は図 3.2.2 に示すようなセグメント内のサブキャプセルに保持され、ATR 南東ローブ内の A-10 照射チャンネル内に、計 4 個のセグメントが挿入された[127]。各サブキャプセルの内部はリチウムで充填され、照射による γ 加熱によってリチウム（融点：180℃）が溶融し、照射温度の均一性が保たれる。また、各サブキャプセルは、ガドリニウムのフィルターで覆われ、熱中性子の遮蔽が為されている。セグメント内部は He-15%Ar 混合気体で満たされ、目標とする照射温度に適したギャップが施された。

本研究で用いた試料は、AS4 と AS16 と呼ばれるサブキャプセル内に挿入された。それぞれの照射条件を表 3.2.2 に示す。照射温度の評価は、 γ 加熱速度の計算値に基づき、THTB heat transfer code を用いた計算値である。照射温度の上限をモニターするために、メルト・ワイヤーが一部のサブキャプセルに挿入されており、AS4 では MW04 (Se:221℃, Sn:232℃) によりモニターされたが、AS16 には挿入されなかった。

表3.2.2 ATR-A1照射における照射条件

Sub-Capusle	AS4	AS16	(unit)
Temperature	270	348	°C
Dose	2.2	3.8	dpa
Irradiation Period	132.9	132.9	EFPDs
Dose Rate	1.9×10^{-7}	3.3×10^{-7}	dpa/s
He Generation	9Cr-2W	0.49	appm
	9Cr-2W-1Ni	0.57	
	9Cr-2W-B	36 (¹⁰ B full burn-up)	

Ni 添加鋼における He 生成量は、非添加鋼のものと大差ないが、B 添加鋼においては、天然 B 中に含まれる ^{10}B の燃焼によって 36appm の He が生成された。ATR-A1 照射における 3 サイクルの運転履歴の詳細を表 3.2.3 に示す。

表3.2.3 ATR-A1照射における照射履歴

サイクル	期間	EFPDs	出力(MW)	試料温度(°C)	
				AS4	AS16
108A	11/30/95~1/14/96	42.8	25.0	263	337
108B	1/20/96~3/3/96	43.3	27.0	277	355
109A	3/17/96~5/5/96	46.8	25.0	263	337

ここで、JMTR, ATR, FFTF/MOTA の各照射における損傷速度と損傷量の関係を図 3.2.3 に示す。

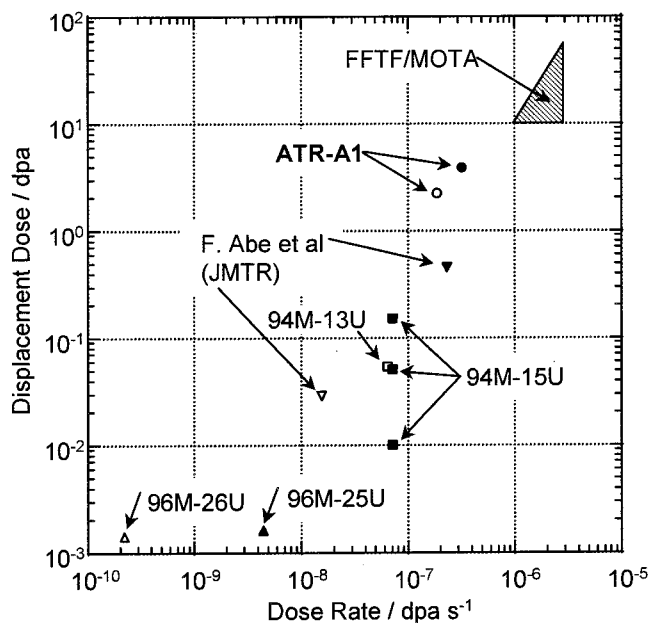


図3.2.3 JMTR, ATR, FFTF/MOTAの各照射における損傷速度と損傷量の関係。

3.2.2 照射後試験

JMTR 照射材に対する引張試験は、東北大学金属材料研究所大洗施設に設置された INTESCO 社製引張試験機を用いて行った。クロスヘッド速度は 0.2mm/min で、試験温度は全て室温である。ATR 照射材に関しては、米国 PNNL に設置された INSTRON 社製引張試験機を用いて

行った。クロスヘッド速度は 0.2mm/min で、試験温度は室温と、照射温度と同一の 270°C にて行った。目的温度に達した後、保持した時間は 1.5h である。

ATR 照射したシャルピー衝撃試験片 (1.5 mm サイズ) に関しては、東北大学金属材料研究所大洗施設に移送した後に試験を行った。シャルピー衝撃試験は、同施設に設置された計装型シャルピー衝撃試験機を用いて行った。ハンマー速度は 5 m/s である。

マイクロビッカース硬さ試験は、東北大学金属材料研究所 α 放射体実験室に設置された AKASHI 社製 MVK-E 硬さ試験機を用いて行った。荷重 0.2 kg, 負荷時間 15 s である。

ATR 照射材の TEM 観察は、米国 PNNL に設置された JEOL JEM-1200EX, 2000EX を用いて行った。

陽電子寿命測定は、東北大学金属材料研究所 α 放射体実験室に設置された装置を用いて行った。測定温度は室温である。

照射後焼鈍実験は、真空度 1×10^{-7} torr で行った。等時焼鈍における焼鈍時間は 30 min である。また、等温焼鈍実験は 170, 190, 220, 250, 300, 340, 400°C の各温度で行った。等温焼鈍の結果から焼鈍回復過程の活性化エネルギーを決定する方法として、クロスカット法がある[128]。等温焼鈍過程において複数の回復段階が存在する場合、それぞれを単一活性化過程として分離できるならばクロスカット法を適用できる。この時欠陥濃度の変化の速度は次のように表せる。

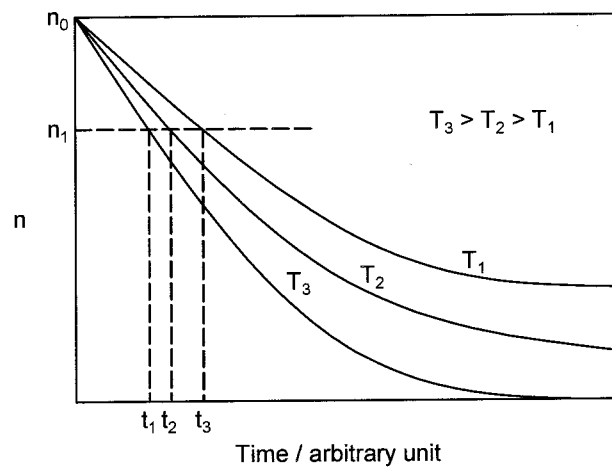


図3.2.4 等温焼鈍曲線に対するクロスカット法の適用概念図。

$$dn/dt = -F(n)K \equiv -F(n)K_0 \exp(-E/kT) \quad (3-2-1)$$

ここで、 n : 欠陥濃度, $F(n)$: n の関数, K : 速度定数, $\exp(-E/kT)$: ボルツマン因子, E : 活性化エネルギーである。等温焼鈍結果は図 3.2.4 のようになると考えられ、式(3.2.1)は、

$$-\int_{n_0}^{n_1} \frac{dn}{F(n)} = K_0 t \exp(-E/kT) \quad (3-2-2)$$

と表せる。図 3.2.4 のように、ある濃度 n_1 のとき時間軸に平行な直線を引くと、温度 T_1 , T_2 , T_3 の曲線とそれぞれ時間 t_1 , t_2 , t_3 で交点を持つ。この時、

$$t \exp(-E/kT) = C \quad (3-2-3)$$

と書くことが出来るので,

$$\ln \frac{t_1}{t_2} = \frac{E}{k} \left(\frac{1}{T_1} - \frac{1}{T_2} \right) \quad (3-2-4)$$

という関係が成り立ち、それぞれの温度について同様に考えると,

$$\ln(t_i) = \ln C + E/kT_i \quad (3-2-5)$$

となり、 t_i の自然対数が T_i に対して傾き E/k を持つ直線となり、この傾きから対応する回復過程における活性化エネルギーを評価できる。

3.3 実験結果

3.3.1 引張試験

JMTR で 220℃照射 (94M-15U) した Mod. JLF-1/LSM と Mod. JLF-1/LSM/Ni の引張試験によって得られた応力-歪曲線を図 3.3.1 に示す。引張特性は、0.15dpa (図 3.2.1 中③) という低い照射量でさえ、大きな変化を示し、降伏応力の上昇と伸びの減少が見られた。図 3.3.1 には、<170℃、<0.15dpa の照射をした試料 (図 3.2.1 中④) に関しても示した。Ni 非添加鋼である Mod. JLF-1/LSM では、220℃照射材との違いが見られなかったのに対し、Ni 添加鋼である Mod. JLF-1/LSM/Ni では、降伏応力の顕著な増大が見られた。

ATR270℃照射した Mod. JLF-1/LSM, Mod. JLF-1/LSM/Ni に対する室温での引張試験によって得られた応力-歪曲線を図 3.3.2 に示す。ここでも、Ni 添加鋼である Mod. JLF-1/LSM/Ni は Mod. JLF-1/LSM に比べ、顕著な照射硬化を示している。図 3.3.3 に、Mod. JLF-1/LSM, Mod. JLF-1/LSM/Ni, JLM-1 について、非照射材と 270℃照射材における降伏応力の試験温度依存性を示す。試験温度の上昇によって、各試料とも降伏応力の低下が見られた。各試験温度における降伏応力変化量を図 3.3.4 に示す。Mod. JLF-1/LSM/Ni は Mod. JLF-1/LSM に比べ、約 2 倍の硬化量を示した。また、B 添加鋼である JLM-1 も Mod. JLF-1/LSM/Ni に次ぐ硬化を示し、試験温度の上昇による硬化量の低下は他の鋼種よりも少なかった。

図 3.3.5 に、JMTR, ATR 照射した低放射化フェライト鋼における照射硬化の照射量依存性を示す。Ni 非添加鋼に関しては、Abe らの 9Cr-1W, 3W 鋼における照射量依存性[44]と同様の傾向が見られるが、Ni 添加鋼である Mod. JLF-1/LSM/Ni の JMTR80℃照射材と ATR270℃照射材に関しては、他の照射材よりも高い照射量依存性を示している。

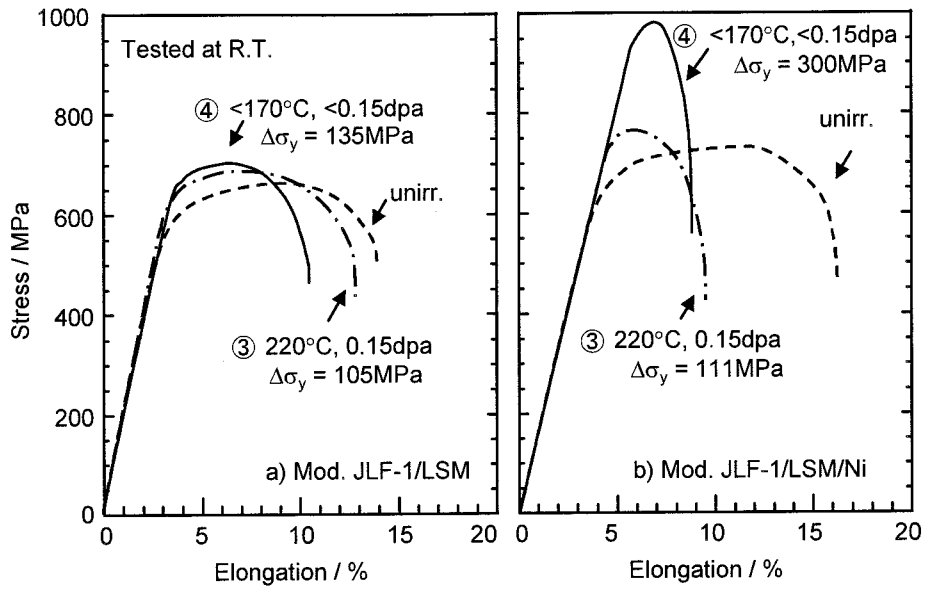


図3.3.1 JMTR (94M-15U) 照射したa) Mod. JLF-1/LSM, b) Mod. JLF-1/LSM/Ni の引張試験による応力-歪み曲線.

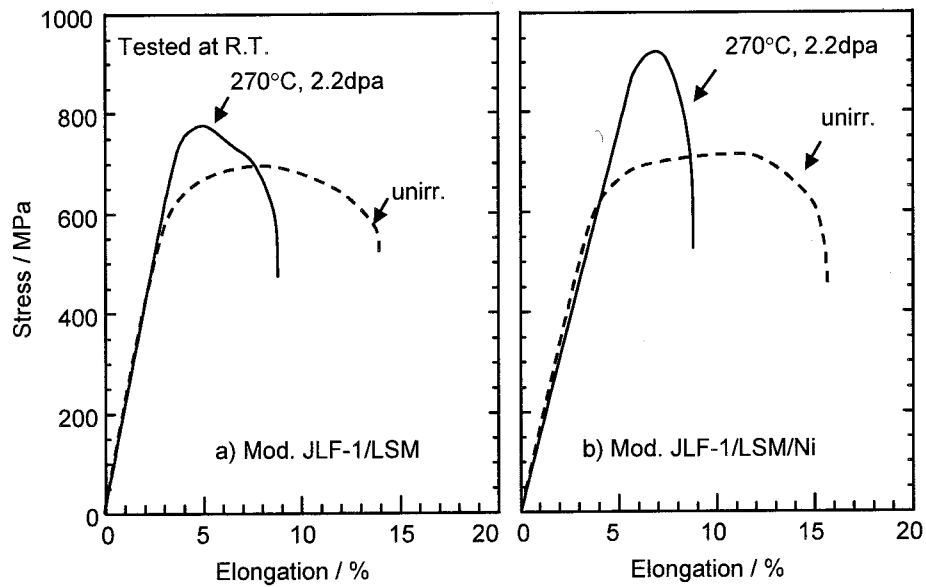


図3.3.2 ATR-A1照射(270°C)した, a) Mod. JLF-1/LSM, b) Mod. JLF-1/LSM/Ni の引張試験による応力-歪み曲線.

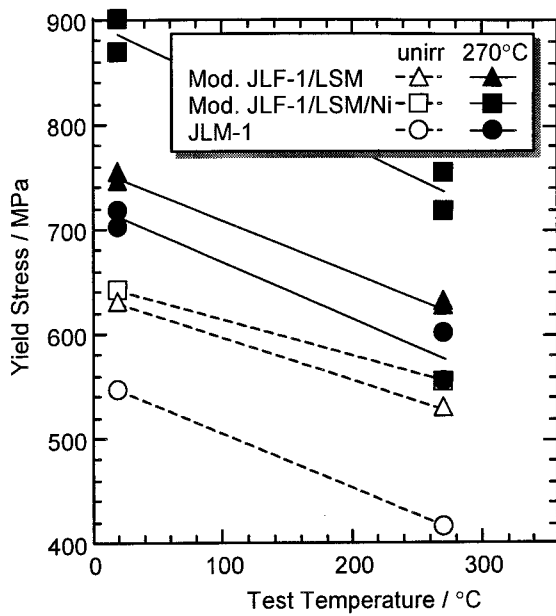


図3.3.3 Mod. JLF-1/LSM, Mod. JLF-1/LSM/Ni, JLM-1における, 非照射材とATR-A1照射 (270°C) 材の降伏応力の試験温度依存性.

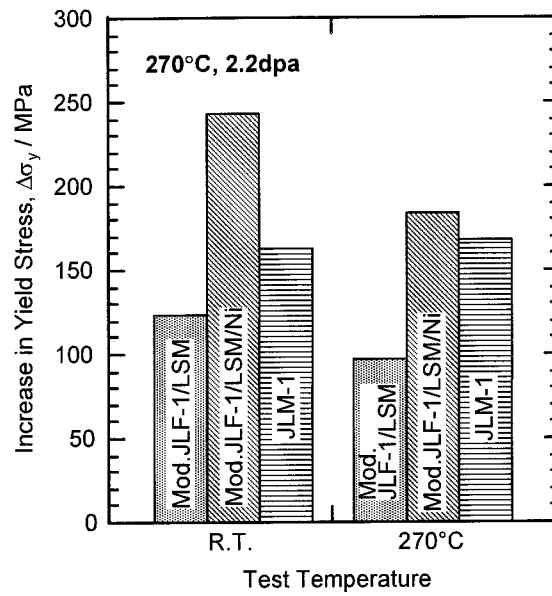


図3.3.4 ATR270°C照射したMod. JLF-1/LSM, Mod. JLF-1/LSM/Ni, JLM-1における降伏応力変化量の試験温度依存性.

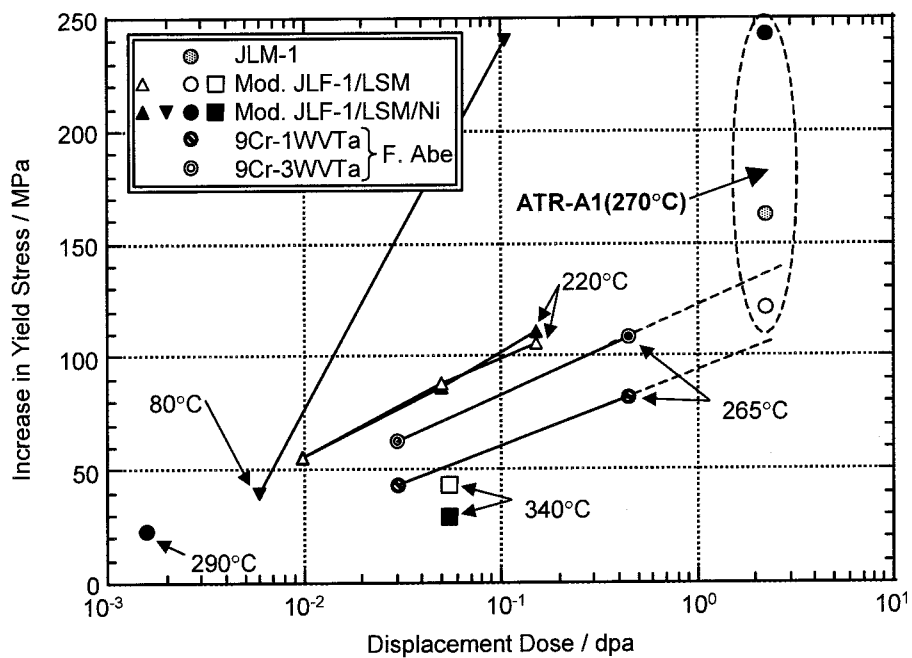


図3.3.5 JMTR, ATR照射した低放射化フェライト鋼の照射硬化の照射量依存性

3.3.2 シャルピー衝撃試験

ATRにおいて、270℃、348℃照射した Mod. JLF-1/LSM/Ni と JLF-1 のシャルピー衝撃試験を行った。図 3.3.6 に、非照射材と ATR 照射材における延性脆性遷移曲線を示す。いずれの鋼種も、照射による USE の低下、DBTT の上昇が見られた。表 3.3.1 にそれぞれの解析結果を示す。348℃照射材においては、両鋼種の間に Δ DBTT の顕著な差は見られなかった。しかし、278℃照射した Mod. JLF-1/LSM/Ni の Δ DBTT は、JLF-1 の約 2 倍の値を示した。

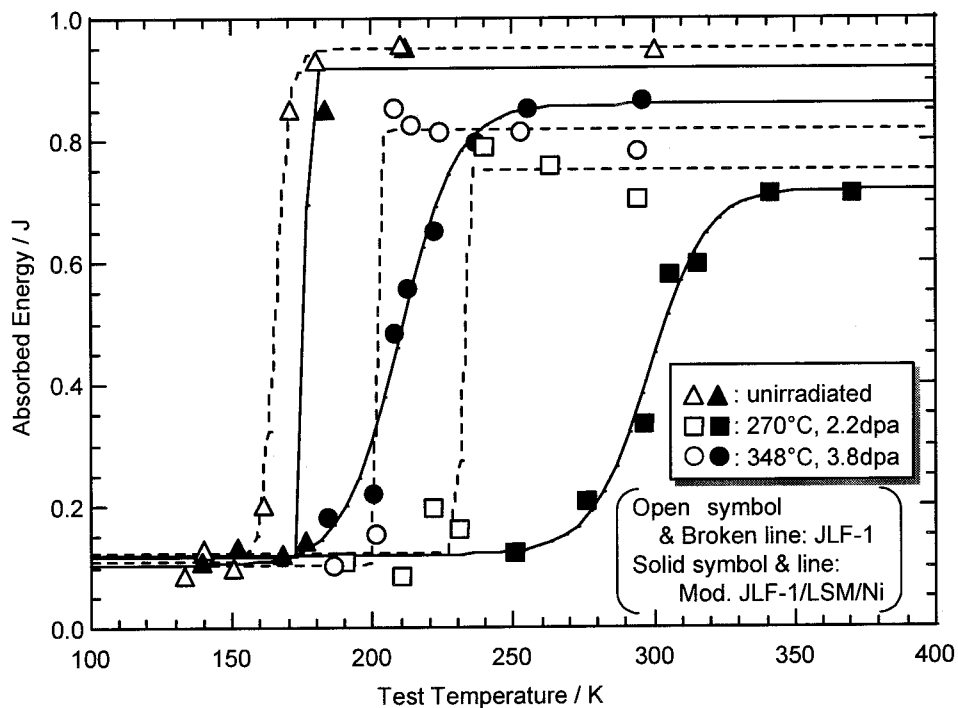


図3.3.6 非照射材とATR照射材における延性脆性遷移曲線。

\triangle ; JLF-1 (非照射), \blacktriangle ; Mod. JLF-1/LSM/Ni (非照射)
 \square ; JLF-1 (270℃照射), \blacksquare ; Mod. JLF-1/LSM/Ni (270℃照射)
 \circ ; JLF-1 (348℃照射), \bullet ; Mod. JLF-1/LSM/Ni (348℃照射)

表3.3.1 シャルピー衝撃試験によって得られたUSEとDBTT

	JLF-1			Mod.JLF-1/LSM/Ni		
	USE	DBTT	Δ DBTT	USE	DBTT	Δ DBTT
Unirr.	0.95	166	-	0.92	177	-
348℃	0.86	210	44	0.82	202	25
270℃	0.75	232	66	0.72	298	121

この時の破壊様式を確認するために、SEM を用いて破面観察を行った。270℃照射した JLF-1, Mod. JLF-1/LSM/Ni について、脆性域、延性域温度で試験した材料の破面観察結果を図 3.3.7 に示す。いずれの鋼種でも、脆性域ではへき開破壊様式を示し、粒界割れは全く観察されなかった。

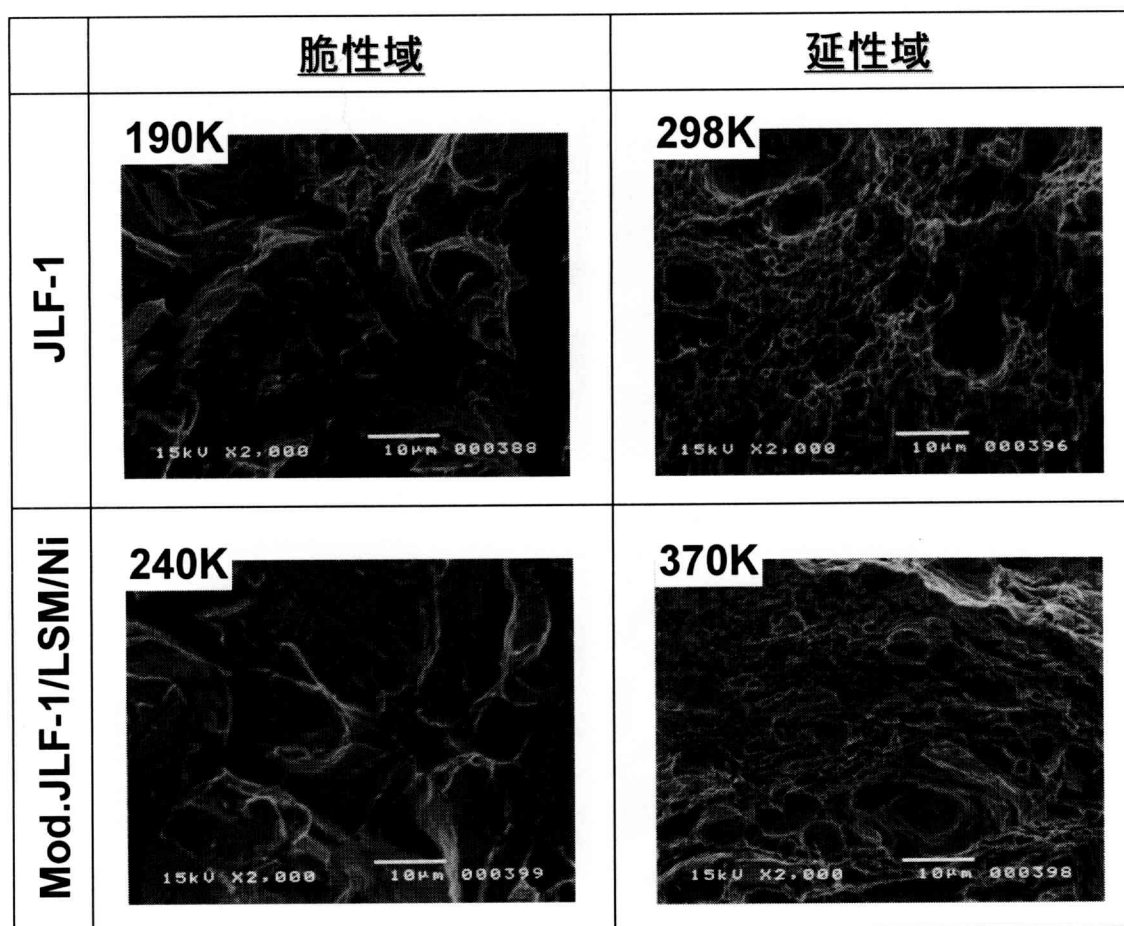


図3.3.7 ATR270℃照射したJLF-1, Mod. JLF-1/LSM/Niの延性域、脆性域における破面観察結果。

3.3.3 TEM 観察

TEM を用いた微細組織観察によると、JMTR 照射材に関しては顕著な変化は見られなかった。一方、ATR 照射材に関しては、図 3.3.8 に示すようにブラック・ドットと転位ループの形成が見られた。撮影条件は $g=110$ である。ATR270℃照射した Mod. JLF-1/LSM で観察された転位ループのバーガース・ベクトルを調べるために、 g ベクトルを変えて撮影した結果を図 3.3.9 に示す。bcc 金属における転位ループは、 $b=a/2\langle 111 \rangle$ および $b=a\langle 100 \rangle$ の 2 種類が存在することが知られている[129]。表 3.3.2 に示すコントラストの消滅条件から判断すると、これらの試料には両種の転位ループが混在する事がわかった。

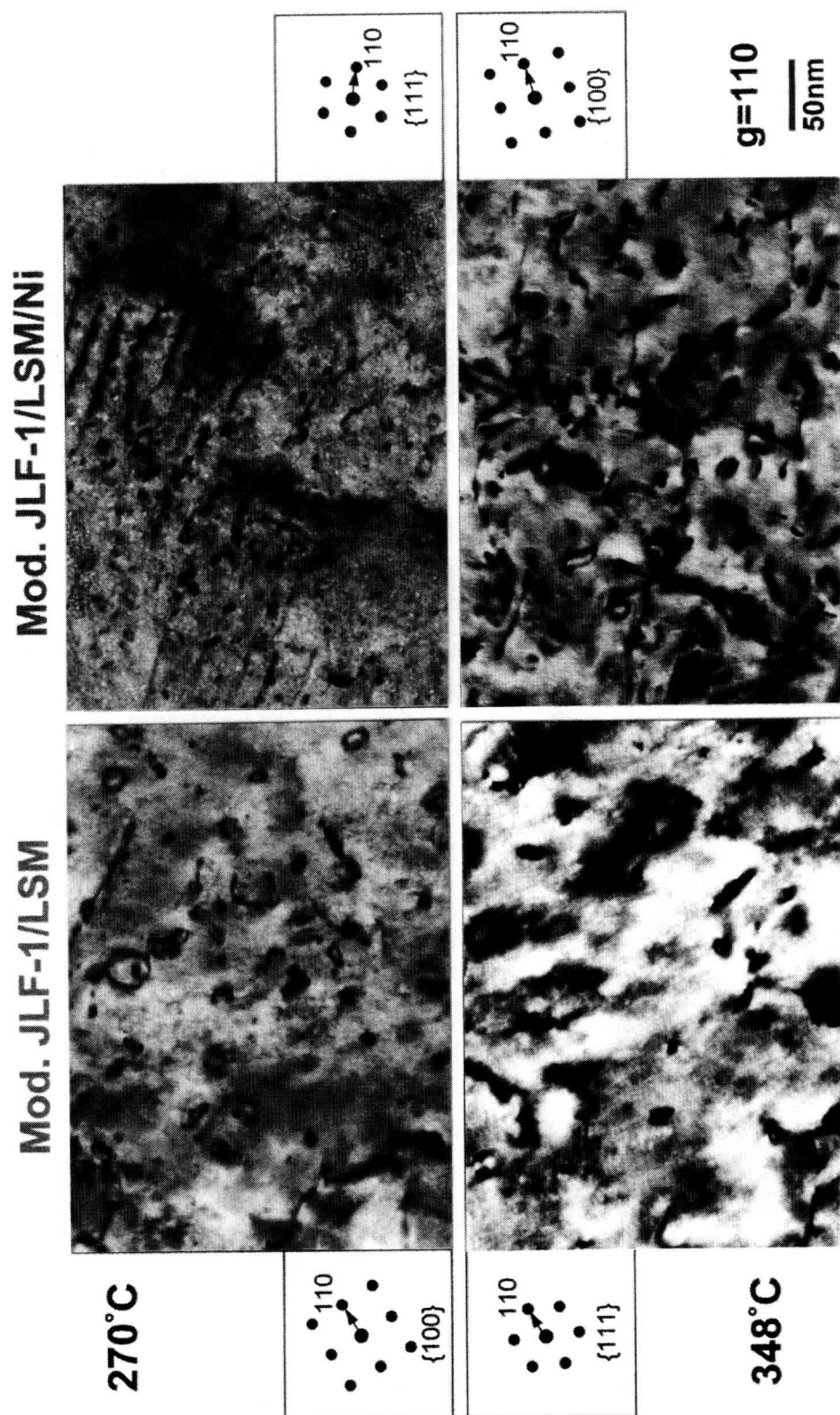


図3. 3. 8 ATR照射したMod. JLF-1/LSM, Mod. JLF-1/LSM/NiのTEM観察結果 (g=110)。

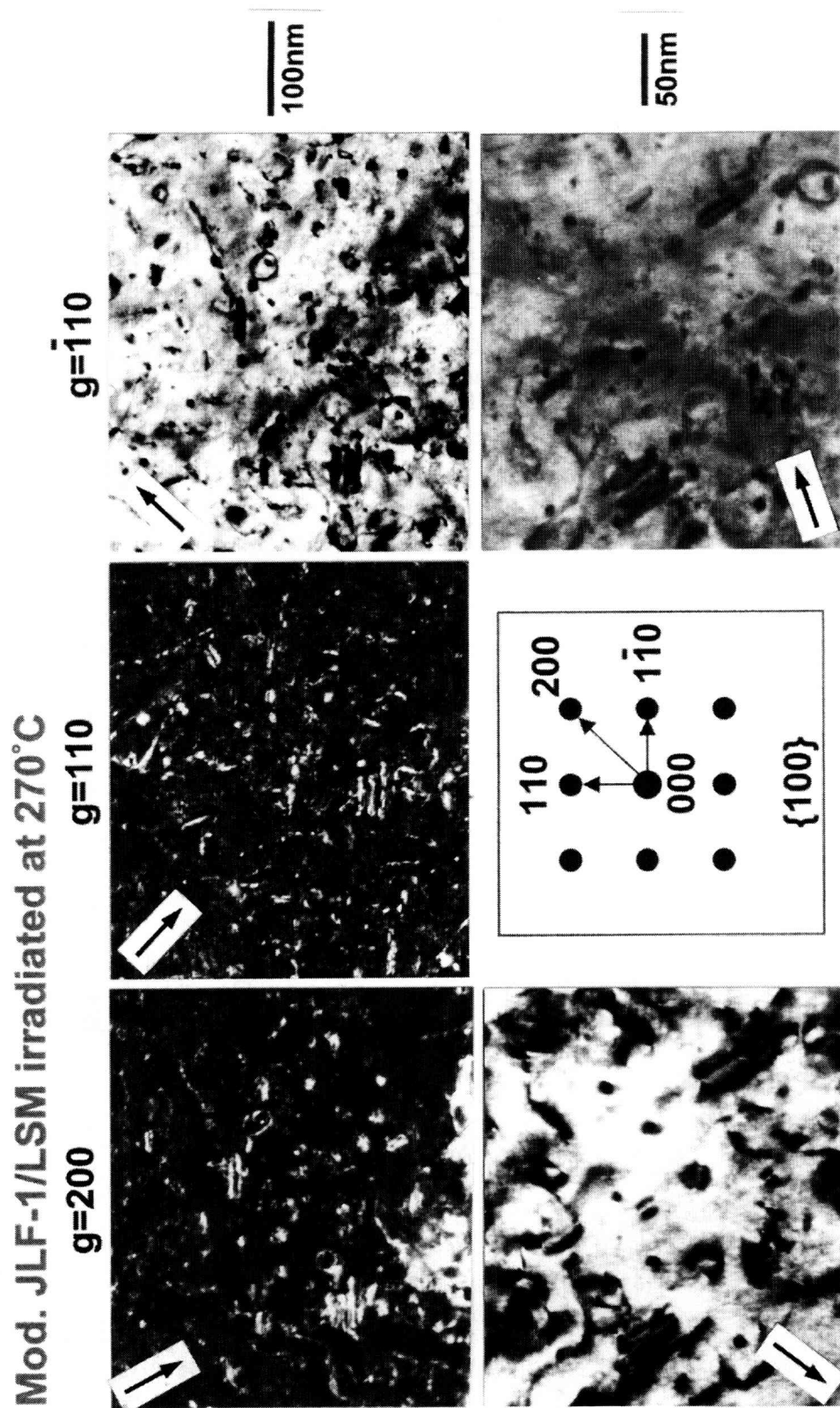


図3. 3. 9 ATR270°C照射したMod. JLF-1/LSMにおいて観察された転位ループの $g \cdot b$ 解析.

表3.3.2 転位ループのコントラスト消滅条件と転位密度測定法

$g \backslash b$	111	$11\bar{1}$	$\bar{1}11$	$\bar{1}\bar{1}1$	100	010	001
200	○	○	○	○	○	×	×
110	○	○	×	×	○	○	×
$\bar{1}10$	×	×	○	○	○	○	×

○: Visible ×: Invisible

$$\begin{cases} g=200 & d^{111} + (1/3) d^{100} = a \\ g=110 & (1/2) d^{111} + (2/3) d^{100} = b \end{cases}$$

$b = a <100>$ loop density:

$$d^{100} = 2b - a$$

$b = a/2 <111>$ loop density:

$$d^{111} = (2/3) (2a - b)$$

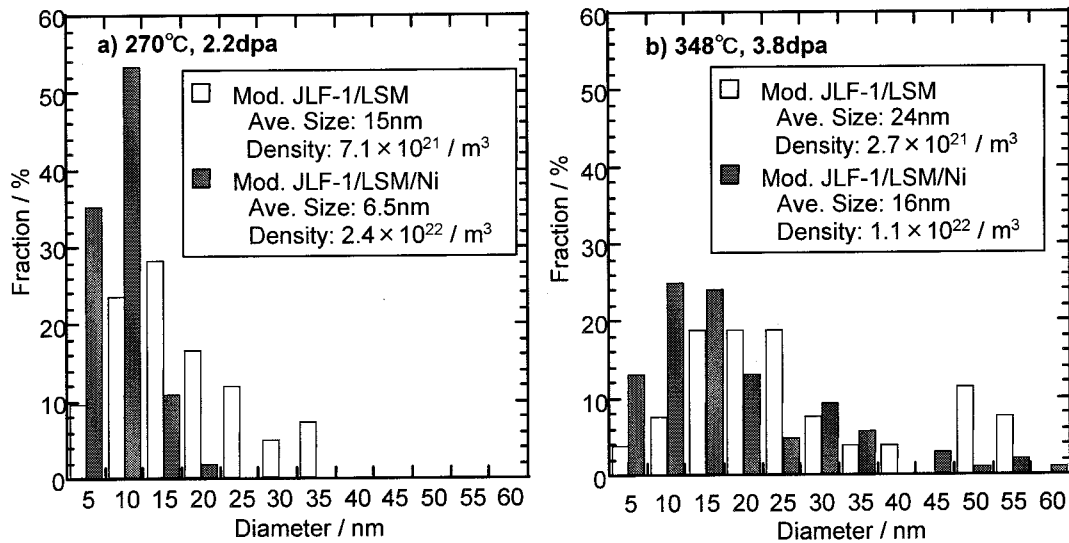


図3.3.10 ATR照射したMod. JLF-1/LSM, Mod. JLF-1/LSM/Niにおけるブラック・ドット, 転位ループのサイズ分布, a) 270°C, 2.2dpa, b) 348°C, 3.8dpa.

図 3.3.10 に, ATR 照射した Mod. JLF-1/LSM, Mod. JLF-1/LSM/Ni におけるブラック・ドット, 転位ループのサイズ分布の計測結果を示す. 270°C照射材における損傷組織は, 348°C照射材よりも微細かつ高密度であり, 特に Mod. JLF-1/LSM/Ni においてその傾向が強かった. また, いずれの照射温度においても, Ni 添加鋼である Mod. JLF-1/LSM/Ni は非添加鋼の Mod. JLF-1/LSM よりも微細かつ高密度な損傷組織が形成されたことが分かった.

3.3.4 陽電子寿命測定

JMTR220°C照射した Mod. JLF-1/LSM と Mod. JFL-1/LSM/Ni におけるマイクロボイドの挙動を調べるために、陽電子寿命測定を行った。図 3.3.11 に示すスペクトルからわかるように、照射によって長寿命成分が出現した。図 3.3.12 に、陽電子寿命測定の結果を示す。横軸に照射量 (dpa)、縦軸はそれぞれ寿命値 (lifetime) と強度 (intensity) を示す。それぞれの誤差は、シンボルの大きさに収まっていた。非照射試料は 120~140ps 程度の寿命を示し、純鉄におけるマトリックスにおける消滅寿命 (110ps) よりも若干長い。これは、図 2.4.5 から、マルテンサイト組織中に多量に含まれる転位が影響しているためと考えられる[130]。Mod. JLF-1/LSM においては、0.01dpa の照射によって約 350ps の寿命を持つ長寿命成分が出現し、その後、照射量の増加と共に寿命値は増加し、0.15dpa では約 470ps に達した。強度に関しては、照射量の増加により若干減少傾向にあったが、その差は 10% 程度内ではほぼ一定であった。一方、Mod. JFL-1/LSM/Ni に関しては、0.01dpa の照射により約 470ps の寿命値を示し、その後約 500ps にまで上昇した。また、強度に関しても、0.01dpa で 5% だったものが、0.048dpa で 17% にまで上昇し、その後 0.15dpa では変化が見られなかった。図中には、<170°C 照射の結果も合わせて示した。しかし、いずれの鋼種においても、220°C 照射材との顕著な違いは見られなかった。

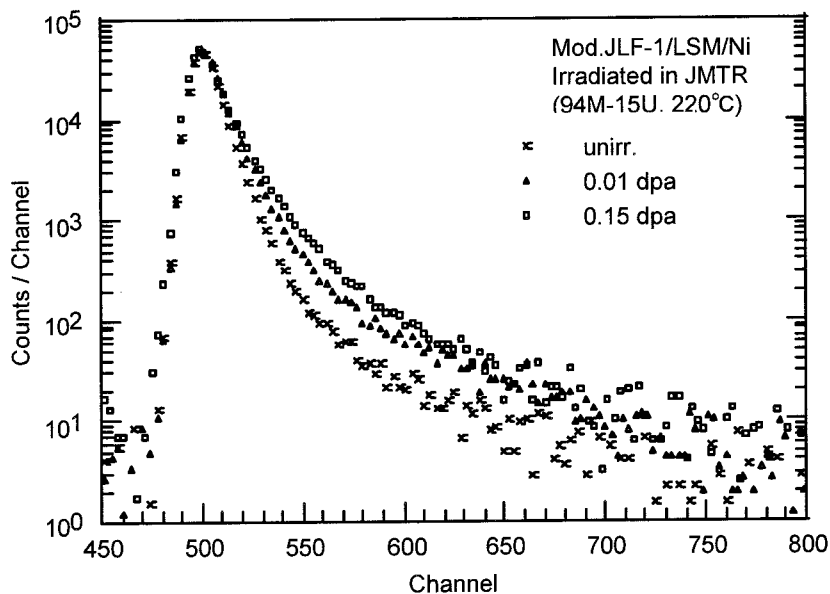


図3.3.11 JMTR220°C照射したMod. JLF-1/LSM/Niにおける陽電子消滅寿命スペクトル。

3.3.5 照射後焼鈍試験

JMTR<170℃照射した Mod. JFL-1/LSM/Ni における顕著な照射硬化の回復過程を調べるために、ビッカース硬さの等時焼鈍回復実験を行った。対照試験として、同照射における Mod. JFL-1/LSM と、220℃, 0.15dpa 照射した Mod. JFL-1/LSM/Ni についても調べた。図 3.3.13 に結果をまとめて示す。220℃照射した Mod. JFL-1/LSM/Ni において、照射硬化の回復ステージは、350~400℃で見られた。一方、<170℃照射した Mod. JFL-1/LSM/Ni の照射硬化は、170~250℃, 250~450℃の2段階の回復ステージを示した。これに対し、<170℃照射した Mod. JFL-1/LSM に関しては、高温側の 250~450℃の回復ステージが見られるのみであった。

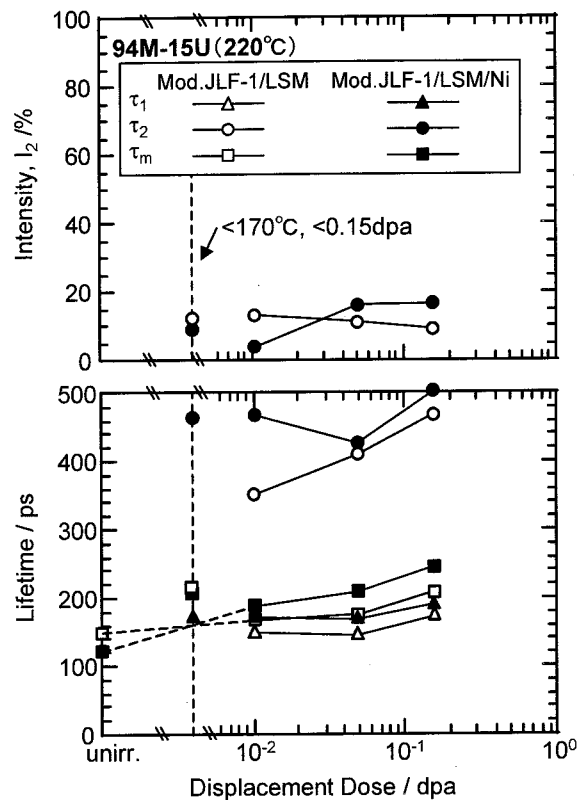


図3.3.12 JMTR220℃照射したMod. JFL-1/LSM, Mod. JFL-1/LSM/Niにおける陽電子消滅寿命の照射量依存性。<170℃照射の結果もあわせて示す。

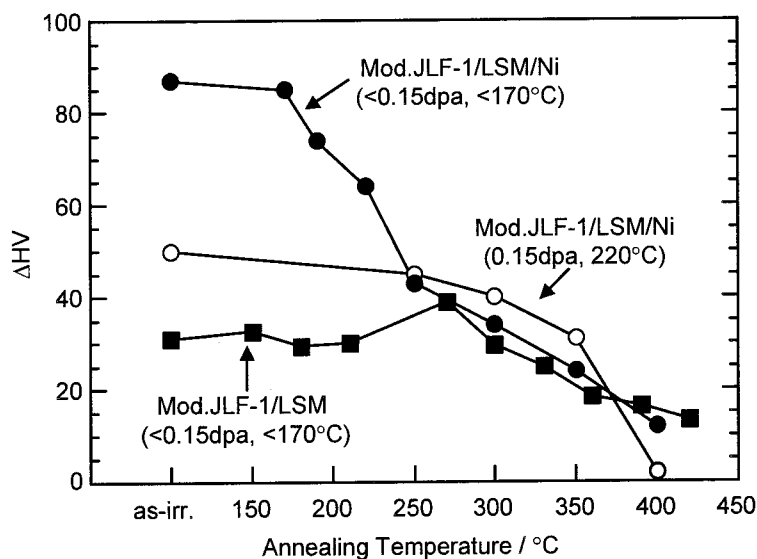


図3.3.13 JMTR<170℃照射したMod. JFL-1/LSM/Ni, Mod. JFL-1/LSM/NiとJMTR220℃照射したMod. JFL-1/LSM/Niにおける照射硬化の等時焼鈍回復挙動。

<170°C照射した Mod. JFL-1/LSM/Ni で見られた 2 段階の回復挙動を調べるために、より低温の 80°C照射した Mod. JFL-1/LSM/Ni について等温焼鈍実験を行った。図 3.3.14 は、170, 190, 220, 250, 300, 340, 400°Cの各温度での焼鈍時間に対するビッカース硬さの変化を示している。焼鈍温度が 300°C以上の場合には、硬さは短時間のうちに非照射材の値に漸近しているのに対し、220, 250°Cでは、HV300 程度で硬さが一定になる領域が見られ、2 段階の回復挙動を示した。また、170, 190°Cにおける硬さの回復は、約 10^4 min の焼鈍によっても HV300 程度までの回復しか見られなかった。これらの結果を高温側と低温側のステージに分け、高温側ステージについては HV300 を 1、非照射材の硬さを 0 として規格化した硬さを表示したものが図 3.3.15(a)である。同様に、低温側ステージに対しては、照射後の硬さを 1、HV300 を 0 として規格化したものが図 3.3.15(b)である。

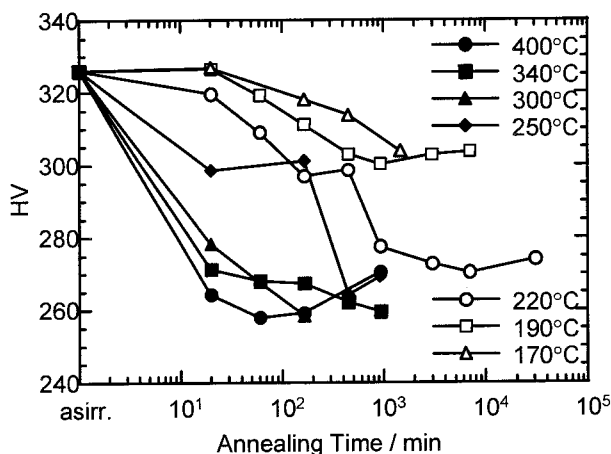


図3.3.14 JMTR80°C照射したMod. JFL-1/LSM/Niにおける照射硬化（ビッカース硬さ変化）の等温焼鈍回復挙動。

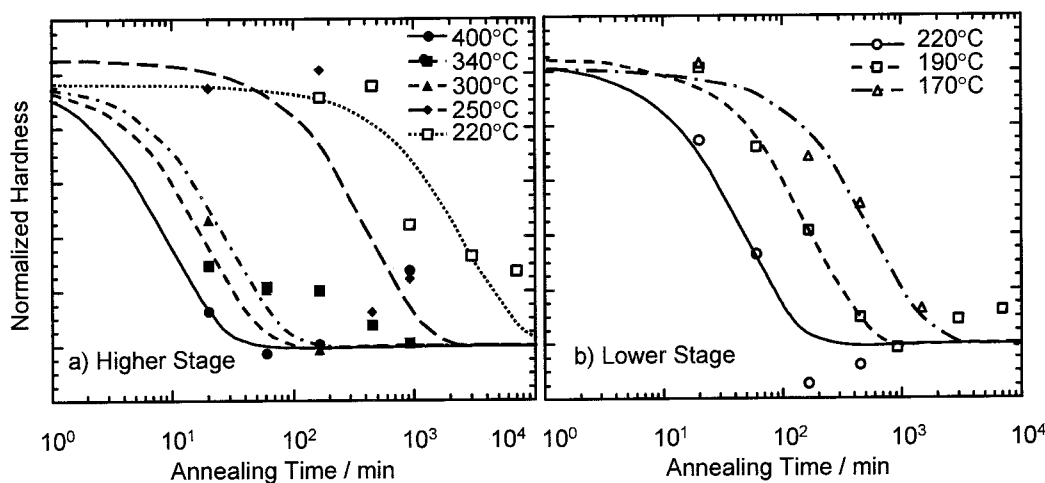


図3.3.15 JMTR80°C照射したMod. JFL-1/LSM/Niにおける規格化したビッカース硬さ変化の等温焼鈍回復挙動。a) 高温側（短時間側）ステージ，b) 低温側（長時間側）ステージ。

これらの結果をもとに、クロスカット法を用いてアレニウス・プロットを行ったのが図 3.3.16 である。白丸印に関しては、回復が急速であったため有効なデータとして扱えないと判断し、活性化エネルギーの評価からは除外した。この図における直線の傾きから、低温側回復ステージの活性化エネルギーは 0.93eV、高温側回復ステージの活性化エネルギー

は 1.4eV とともにすることができた。

<170℃照射した Mod. JLF-1/LSM と 80℃照射した Mod. JLF-1/LSM/Ni における陽電子寿命の等時焼鈍回復挙動を図 3.3.17 に示す。いずれの試料においても、マイクロボイドの回復温度は 300～350℃であり Ni 添加による効果は見られなかった。

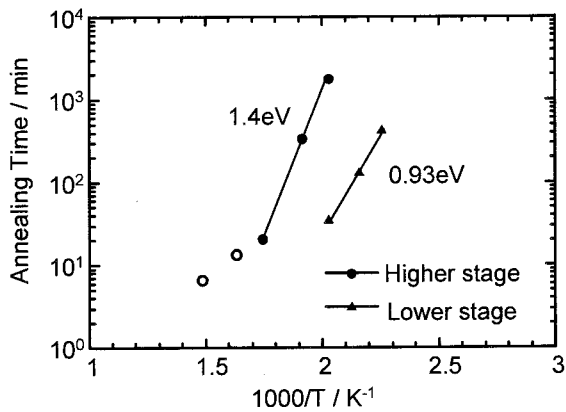


図3.3.16 図3.3.15に示した照射硬化の等温焼鈍回復挙動から得られたアレニウスプロット。

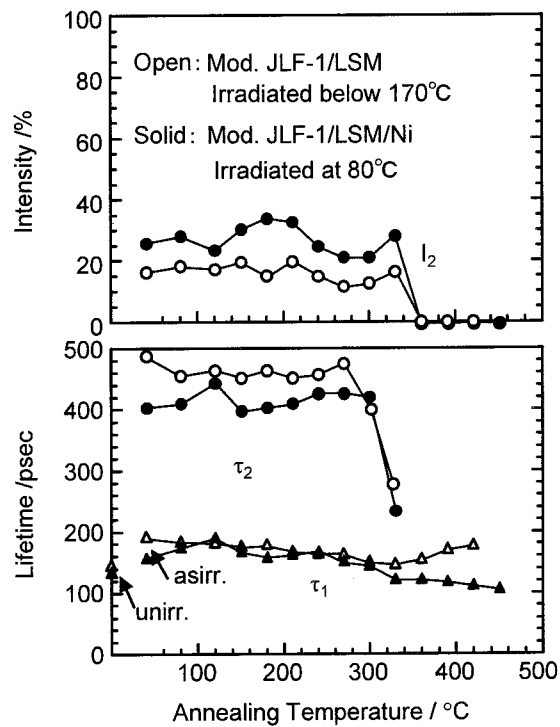


図3.3.17 JMTR<170℃照射したMod. JFL-1/LSM と、JMTR80℃照射したMod. JFL-1/LSM/Niにおける陽電子寿命の等時焼鈍回復挙動。

3.4 考察

3.4.1 低放射化マルテンサイト鋼の照射硬化機構

3.4.1.1 照射硬化の照射量依存性

ここでは、照射硬化の照射量依存性について、微細組織変化の観点から議論する。Appendix B で示すように、オロワン・モデルによれば、転位の運動に対する密度 N 、サイズ d の障害物による硬化量は $(Nd)^{1/2}$ に比例する。よって、照射硬化因子となる照射誘起点欠陥集合体が全てオロワン障害物として働く場合には、その密度とサイズを評価すれば、硬化量の見積もりが可能となる。

Zinkle は、核分裂もしくは 14MeV 核融合中性子照射した fcc 金属について、低照射量域での点欠陥集合体密度と硬化量の再評価を行った[131]。電気抵抗率測定や TEM 観察によると、格子間原子が移動可能な温度での電子線照射によって生じた残存欠陥集合体密度と照射量の関係として、

$$N \propto (\phi t)^{1/2} \quad (3-4-1)$$

を示した (ϕ : 損傷速度, t : 照射時間)。また、25°C で中性子照射した純銅における TEM で観察可能な欠陥の全密度は、 5×10^{20} n/m² 程度までは照射量に比例し、それ以上の照射量で少なくとも 1×10^{22} n/m² までは照射量の 1/2 乗に比例することが示された。

100~400K の照射温度において、銅やオーステナイト鋼などの fcc 金属における照射硬化の照射量依存性は、

$$\Delta\sigma_y \propto (\phi t)^n \quad (3-4-2)$$

とすると、 $n = 1/2, 1/3, 1/4$ が提案されていた。しかし、前述したように欠陥密度が照射量の 1/2 乗に比例することと、欠陥サイズが照射量に依存しなかったことを考慮すると、 $n = 1/4$ とするのが妥当であると Zinkle は再評価した。ただし、比較的高照射量 ($> 10^{22}$ n/m²) になると $n = 1/4$ から外れてくる。

Kiritani は、カスケード損傷下における空孔集合体 (V-cluster) 密度の照射量依存性について更に詳細な考察を行い、図 3.4.1 のようにまとめた[132-135]。V-cluster 密度の照射量依存性には、以下のようなステージが存在すると説明している。

ステージ I: 最も低い照射量域であるステージ I では、V-cluster 密度は照射量の 2 乗に比例して増加する。空孔が動けない低温での照射の極めて初期に現れ、カスケードによって形成した高濃度の空孔から、近接位置で生じたカスケードの助けを借りて、可視の

V-cluster 体が形成すると理解されている。

ステージ II : V-cluster 密度が照射量に比例する領域であり、自由に移動する格子間原子との反応による影響が避けられる場合に生じる。このような条件は、中性子や重イオンによる薄膜への照射の際に生じる。

ステージ II' : ステージ II と同様に照射量に比例して V-cluster 密度が上昇するが、ステージ II よりも密度が低いレベルにある。これは、格子間原子集合体 (I-cluster) が形成し、一部は自由な格子間原子となって連続的に V-cluster を消滅させることが可能になるような低いシンク強度の場合に相当する。

ステージ III : V-cluster 密度は照射量の $1/2$ 乗に比例して増加する。これは、シンク強度が低く、かつ、I-cluster の形成が無い場合に生じ、よく焼鈍した試料に対して高温照射した場合に典型的である。自由に移動する格子間原子は、シンクと V-cluster に吸収され、V-cluster の集積を遅らせる。

ステージ IV : V-cluster 密度はあるレベルに飽和していく。このステージでは、自由に移動する点欠陥がシンクで消滅する場合に、カスケードによって形成された欠陥と、すでに存在している高密度の欠陥との重ね合わせが生じる。中性子や重イオンにより照射した薄膜の試料表面に極めて近い領域が、このケースに相当する。

ただし、これらのステージは、試料や照射条件によって存在しないものもある。

一方、fcc 金属における I-cluster の形成挙動については、Yoshida らが次のように報告している。90, 290°C で核分裂もしくは核融合中性子照射した 316SS において、格子間原子型転位ループ (I-loop) と考えられる微細な (平均 1nm) 欠陥集合体が観察され、オロワン・モデルにおける強度因子 α を 0.2 とすることで、照射硬化をよく説明することが出来た。また、I-loop 密度は、おおよそ照射量の $1/2$ 乗に従って増加した。

フェライト系鉄鋼材料における照射硬化・脆化の研究は、軽水炉压力容器鋼に対して議論されている。軽水炉環境における高速中性子照射量は 0.1dpa 程度であり、100dpa にも及ぶ核融合炉構造材料と比較して極めて少ない。しかしながら、これらの研究で得られた知見は、低放射化マルテンサイト鋼の照射脆化・硬化挙動の理解においても有用であると考えられる。Fisher らによる压力容器鋼の照射硬化に関する総説によると、照射硬化量は、照射量の $1/2$ 乗もしくは $1/3$ 乗に従って増加することが示されている [136]。一方、Hienisch により $1/4$ 乗則も示されている [137]。以上のように、フェライト系鉄鋼材料における照射

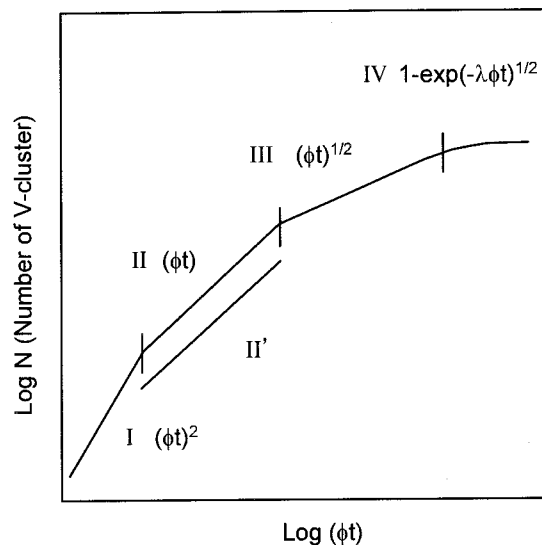


図3.4.1 カスケード損傷下における空孔集合体 (V-cluster) 密度の照射量依存性

硬化の照射量依存性については、(3-4-2) 式において、 $n=1/2, 1/3, 1/4$ が実験結果として示されているが、照射による微細組織変化との相関をもとに議論された例は少なく、統計的な評価に留まっている。

図 3.4.2 に照射硬化の照射量依存性を両対数グラフとして、本研究による結果に加えて FFTF/MOTA 照射の結果も合わせて示した。低放射化マルテンサイト鋼における照射硬化は、照射温度 220°C から 350°C の間で、照射量の 1/4 乗に従って増加する。同様の照射量依存性は、Spätig らによる照射温度 37, 250, 350, 400°C で、照射量 1.75 dpa まで 590 MeV プロトン照射した F82H 鋼においても観察されている[80]。ただし、この実験におけるヘリウム生成速度は約 100 appm/dpa と高く、ヘリウムの影響も考慮しなくてはならない。

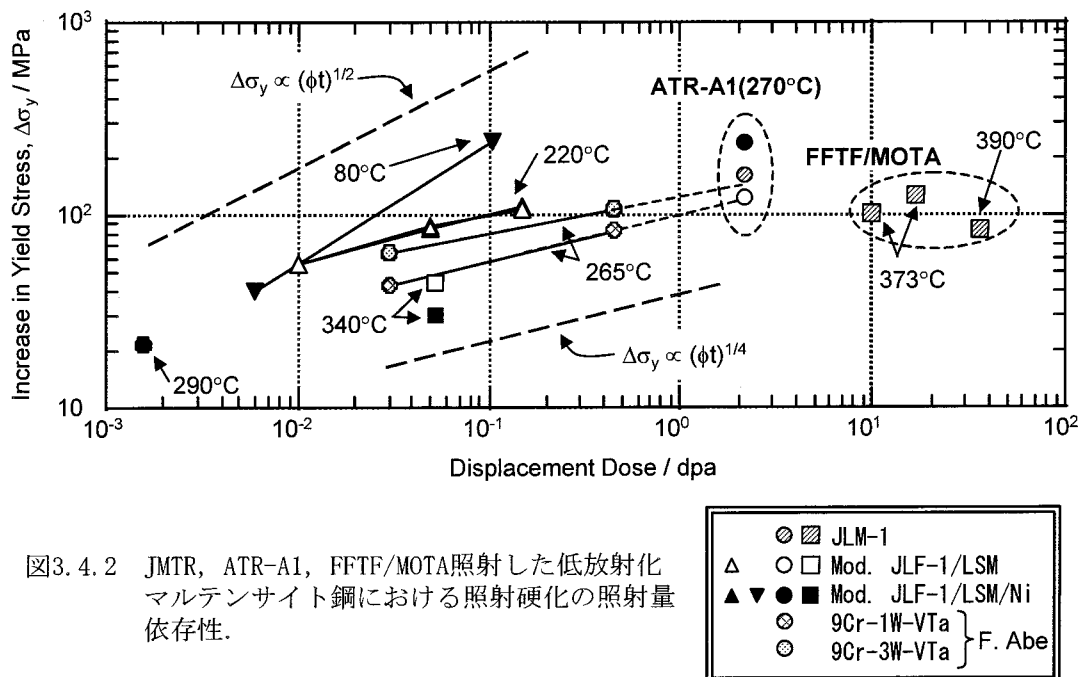


図3.4.2 JMTR, ATR-A1, FFTF/MOTA照射した低放射化マルテンサイト鋼における照射硬化の照射量依存性。

低放射化マルテンサイト鋼において照射誘起欠陥が TEM 観察可能になるのが数 dpa 以上であることを考慮すれば、低照射領域では欠陥の成長は無視できる程度だと考えられるため、fcc 金属における結果を考慮すると、低放射化マルテンサイト鋼における照射硬化因子の密度も照射量の 1/2 乗に比例することが類推される。仮に、低放射化フェライト鋼の照射硬化因子として主要なものが V-cluster (マイクロボイド) であるならば、本研究で得られた結果は Kiritani によるところのステージ III に相当することになるが、これに関しては 3.4.1.3 において再検討する。

3.4.1.2 照射硬化の試験温度依存性

Abe らは JMTR を用いて 300℃, 0.11dpa 照射した 9Cr-1V-0.1C 鋼（フェライト/マルテンサイト 2 相）における照射硬化量の試験温度依存性について調べている [43, 44, 121]．彼らは、照射硬化の原因となる運動転位に対する照射誘起障害物を、試験温度-200～200℃の範囲において熱的成分と非熱的成分に分け、照射硬化量 $\Delta\sigma_y$ は、前者による硬化量を $\Delta\sigma_{th}$ 、後者による硬化量を $\Delta\sigma_{ath}$ として、

$$\Delta\sigma_y = \Delta\sigma_{th} + \Delta\sigma_{ath} \quad (3-4-3)$$

と示した．この時、試験温度が室温付近での主要な照射硬化成分は $\Delta\sigma_{ath}$ であり、試験温度約 120℃以上での $\Delta\sigma_{th}$ は、ほぼ消失する．彼らは、 $\Delta\sigma_{ath}$ の原因となる因子を TEM 観察不可能な微小転位ループ（空孔型）とし、 $\Delta\sigma_{th}$ の原因となる因子を微小点欠陥集合体もしくは点欠陥-溶質原子複合体としている．

一方、Spätig らによると、活性化体積（Appendix B 参照）に対する 590MeV プロトン照射の影響は見られず、照射硬化の試験温度依存性に対して影響を及ぼしていないという研究結果を報告しているが、非照射材に対する測定数が少ないため明確な判断は避けられている [80]．また、Shiba らは、JMTR を用いて 250–265℃, 0.8dpa 照射した F82H 鋼における降伏応力の試験温度依存性を詳細に調べている [50]．それによると、非照射材と照射材における降伏応力は、室温から 400℃の間で同一の試験温度依存性をもっている．

本研究においては、ATR270℃照射材に対して室温と 270℃での引張試験をそれぞれ行った．結果として、特に Mod. JLF-1/LSM/Ni において試験温度の上昇により照射硬化量の減少が見られた．しかし、Abe らの研究を参考にすれば、270℃における熱的応力は無視できる程度であるため、本研究における照射硬化量の減少は、非熱的応力に関係した運動転位の照射誘起障害物が引張試験前の 270℃焼鈍によって消失したと考えることが妥当である．

本研究をはじめとする通常の引張試験は、室温もしくは照射温度で行われることが多い．このような条件下では、低放射化マルテンサイト鋼における照射硬化は概ね応力の非熱的成分に支配されると考えて良いだろう．すなわち、室温以上の照射硬化量の評価において、運動転位に対する固着因子を考える必要はないと言える．同様に、CISH 機構において述べられている運動転位周辺への照射誘起自己格子間原子型ループによる固着も生じていないと考えられる．なぜならば、マルテンサイト鋼は非常に高密度の転位を含んでおり、全ての運動転位を固着するには極めて高い照射量を必要とするであろう．また、鋼中に含まれている炭素などの合金元素によって、微小な可動転位ループが固着され、運動転位への集積を妨げることも考えられる．

3.4.1.3 マイクロボイドによる硬化

前述したように、Abe らは低放射化フェライト鋼中の非熱的硬化因子として、カスケード

により直接形成される空孔型転位ループを取り上げた。しかし、中性子照射した bcc 鉄において空孔型転位ループが観察された例は無く、低放射化マルテンサイト鋼においても同様である。ただし、40K 以下の低温で自己イオン照射した bcc 鉄中においては、高照射量域で空孔型転位ループの形成が確認されている[138]。Kapinos らは、純鉄において空孔型転位ループが形成される条件として、サブカスケードの重なりが起こる重イオン照射や、低温かつ高照射量といった照射条件を挙げている[139]。彼らの行った分子動力学 (MD ; Molecular Dynamics) 計算によると、bcc 鉄において空孔型転位ループの形成確率が極めて低い理由として、カスケードによって生じた欠乏領域 (depleted zone) において、大きな V-cluster が存在しない場合と存在する場合の空孔どうしの結合エネルギーに大きな違いが無いとしている。一方で金属中のカスケード損傷について、近年のコンピューター演算処理能力の大幅な向上によって、より大きな結晶、より大きな PKA エネルギーでの MD 計算が可能になっている。Phythian らによる bcc 鉄に対するカスケード・シミュレーションによると、bcc 鉄ではカスケードによって直接形成される空孔型欠陥集合体は無視できる程度である[140]。実験的にも、77K で中性子照射した高純度鉄 (< 5 appm C) の陽電子寿命測定によって観測された長寿命成分は 200ps 程度であり、2 重もしくは 3 重空孔の形成を示唆しているのみである[141]。それに対して、低温で中性子照射した鉄基モデル合金やフェライト鋼において、より長寿命を持つマイクロボイドの形成が確認されているため[142]、合金元素 (不純物元素) やより高い PKA エネルギー成分による効果が生じている可能性がある。

以上の結果より、Abe らが照射硬化の非熱的成分として提案した空孔型転位ループの形成は極めて考えにくいことが分かる。本研究においても、Visible な空孔型転位ループの形成は確認されず、空孔型点欠陥集合体としてはマイクロボイドの形成のみが確認された。これらのマイクロボイドがカスケードにより直接形成されたのか、それともその後の拡散過程で形成されたのかは、照射温度が空孔移動可能な温度 (stage III) 以上であったために判別できない。しかし、マイクロボイドによって照射硬化がどれだけ生じるのかを検討することは有意義である。

陽電子寿命により検出されたマイクロボイドのサイズは寿命値から直接的に評価することが可能であるが、欠陥密度については陽電子の捕獲モデルを用いて理論的に評価する[98]。マイクロボイドの密度 C_V は、

$$C_V = \kappa/\mu \quad (3-4-4)$$

と与えられる。ここで、 κ は式 (2-4-17) で示した捕獲速度である。 μ は比捕獲速度と呼ばれ、体積捕獲モデルでは、

$$\mu = N_V \cdot \mu_{IV} \quad (3-4-5)$$

と与えられる。ここで、 N_V はマイクロボイド中に含まれる空孔の数である。また、 μ_{IV} は単空孔に対する比捕獲速度であり、全ての金属中で $10^{14} \sim 10^{15} \text{ s}^{-1}$ 程度であると言われている。bcc 鉄においては、 $\mu_{IV} = 1.1 \pm 0.2 \times 10^{15} \text{ s}^{-1}$ という値が実験的に求められている[143]。しかし、図 2.4.2 で示したように、空孔数が 10 個程度以上では表面捕獲の影響のために、式 (3-4-5) は成立しなくなる。よって、鉄において (3-4-5) 式が適用できる範囲は、図 2.4.4 から判断すると、空孔数 15 個程度、寿命値 400ps 程度までである。これ以上の大きさのマイクロボイドに対する比捕獲速度は、マイクロボイド半径 R_V に対して、 πR_V^2 (伝搬模型) や $4 \pi R_V D$ (拡散模型) の変化をすると考えられている[99]。以上の知見を元に、図 3.3.12 に示した 220°C 照射した Mod. JLF-1/LSM と Mod. JLF-1/LSM/Ni の陽電子寿命測定結果からマイクロボイドの半径と密度を計算した結果を図 3.4.3 に示す。Mod. JLF-1/LSM では、照射量の増加と共にサイズは増加し密度は減少しているが、Mod. JLF-1/LSM/Ni では、照射量の増加と共に密度は増加傾向にあるが、サイズはほぼ変わらなかった。これらの結果から、オロワンの式における強度因子 α を 0.2 とすると、マイクロボイドによる硬化量は図 3.4.4 のように見積もられる。何れの鋼種、照射量においてもマイクロボイドによる硬化は少なく、比較的低照射量で飽和している様子が伺える。

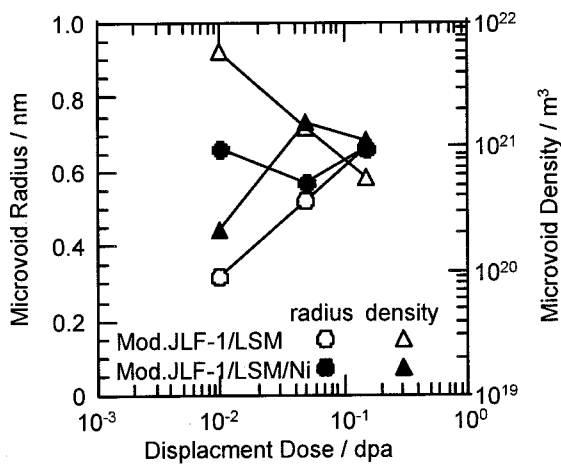


図3.4.3 220°C照射したMod. JLF-1/LSMと Mod. JLF-1/LSM/Niの陽電子寿命測定結果からマイクロボイドの半径と密度を計算した結果。

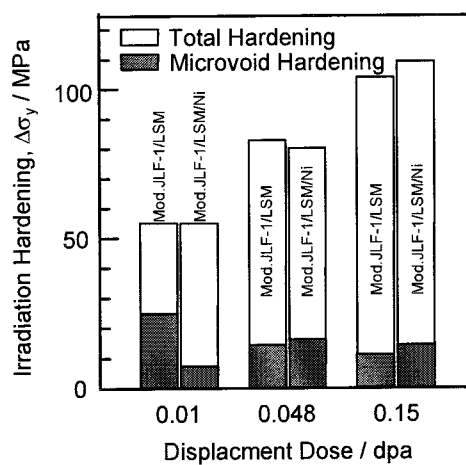


図3.4.4 図3.4.3の結果からマイクロボイドによる硬化量を見積もった結果。

3.4.1.4 焼鈍回復挙動

照射後焼鈍の結果によると、陽電子寿命測定からマイクロボイドの分解温度 (stage V) は 300~350°Cであることがわかった。しかし、照射硬化の顕著な回復が生じる温度は 350~400°Cであることを考えると、マイクロボイドが直接的にオロワン障害物として照射硬化

に寄与している割合は小さいことが考えられる。表 3.4.1 に、純鉄、フェライト系モデル合金、フェライト系鉄鋼材料に関する空孔と格子間原子の移動エネルギーを示す。JMTR80°C 照射した Mod. JLF-1/LSM/Ni の高温側の回復ステージに対応する活性化エネルギーが 1.4eV であったことを考慮すると、照射硬化の回復には空孔の移動が寄与している可能性がある。よって、照射硬化因子として I-cluster を考えると、照射硬化の回復過程は空孔の流入による I-cluster の消失によって生じる二次反応に起因することが予測される。

表3.4.1 鉄鋼材料における点欠陥挙動の活性化エネルギー

材料	E_m^V	E_f^V	E_m^I	参考文献
Fe	0.8	1.6	0.26	[144]
JFMS	1.15	1.6	0.9	[144]
Fe	0.55	–	0.23	[145]
Fe-10Cr	0.96	–	0.35	[146, 147]
Fe-10Cr-1Ni	–	–	0.8-0.9	[146, 147]

E_m^V : 空孔の移動エネルギー, E_f^V : 空孔の形成エネルギー
 E_m^I : 自己格子間原子の移動エネルギー

3.4.1.5 I-cluster 硬化モデル

これまでの議論によって、V-cluster（マイクロボイド）の照射硬化への寄与は小さく、I-cluster が低放射化マルテンサイト鋼における主要な硬化因子である可能性を指摘した。ここで、I-cluster の挙動を評価するために、先述した Kiritani による V-cluster 密度の照射量依存性の解釈を、I-cluster に対して適用する。I-cluster の集積速度 dN_i/dt は、カスケードにより直接形成される速度を P 、自由空孔の吸収による消失を A とすると、以下の式で表される。

$$dN_i/dt = P - A \quad (3-4-6)$$

自由空孔に対する永久シンク効率を $\beta_2 S$ (S : シンク密度)、存在している I-cluster のシンク効率を $\alpha_2 N_i$ とすると、自由空孔はそれぞれに分配されるので、I-cluster の消滅速度 A は、

$$A = P \frac{\alpha_2 N_i}{\alpha_2 N_i + \beta_2 S} \quad (3-4-7)$$

と表される。照射のごく初期では、 $\alpha_2 Pt \ll \beta_2 S$ であり、I-cluster の集積は、

$$Ni = Pt \quad (3-4-8)$$

と示され、ステージ II に相当する。その後照射量が増加し、 $\alpha_2 Pt \gg \beta_2 S$ となると、

$$Ni = \left(2 \frac{\alpha_2}{\beta_2} SPt \right)^{1/2} \quad (3-4-9)$$

となり、ステージ III に相当する。V-cluster が形成する場合には、自由空孔のシンクである S は一定ではなく、照射時間とともに増加するようになる。永久シンクで消失する量が無視出来る時、V-cluster を形成する空孔の量は存在する密度 Ni の I-cluster に含まれる格子間原子と等しい。この場合、V-cluster の量は Ni にほぼ比例し、空孔に対するシンク効率も $\beta_3 Ni$ と示すことが出来る。永久シンクに対して、V-cluster が充分強いシンク効率を持つ場合、式における永久シンクの項 $\beta_2 S$ を $\beta_3 Ni$ に置き換えられ、

$$Ni = \frac{\beta_3}{\alpha_2 + \beta_3} Pt \quad (3-4-10)$$

と表せる。これは、ステージ III' に相当する。

上述のモデルで問題となるのは、格子間原子は空孔よりも低い温度で動くことが可能であり、カスケードから直接形成される I-cluster 以外に、自由格子間原子どうしの合体による I-cluster の形成を考慮しなくてはならない点である。この点は、ここで議論するには複雑な問題となるので、第 7 章に譲る。

また、CISH 機構の前提となる微小 I-loop の一次元 glide 運動が生じるような状況では、上記の議論は成立しない。しかし前述したように、図 3.3.8 で示した TEM 観察結果によると、visible な転位ループが運動転位近傍に偏って分布している様子は見られず、マトリックス中に均一に存在していたため、マルテンサイト鋼中においては、多量の炭素などの合金元素によって可動転位ループが固着され、実質的に転位ループは動けない可能性が高い。よって、高純度鉄の場合とは異なり、低放射化マルテンサイト鋼における照射誘起 I-loop は運動転位の固着因子ではなく、オロワン障害物として機能していると考えられる。

以上のように、本研究やその他の研究で得られた照射硬化の照射量依存性を説明するには、照射硬化因子として従来言われてきた V-cluster のみならず、I-cluster によっても可能である。

3.4.2 照射硬化・脆化に及ぼす Ni 添加の効果

3.4.2.1 微細組織と強度特性の相関に及ぼす Ni 添加効果

JMTR<170°C照射した Mod. JLF-1/LSM/Ni における陽電子寿命は、Mod. JLF-1/LSM との相違が見られなかったため、Ni 添加による照射硬化の促進はマイクロボイド形成挙動によるものではないと考えられる。

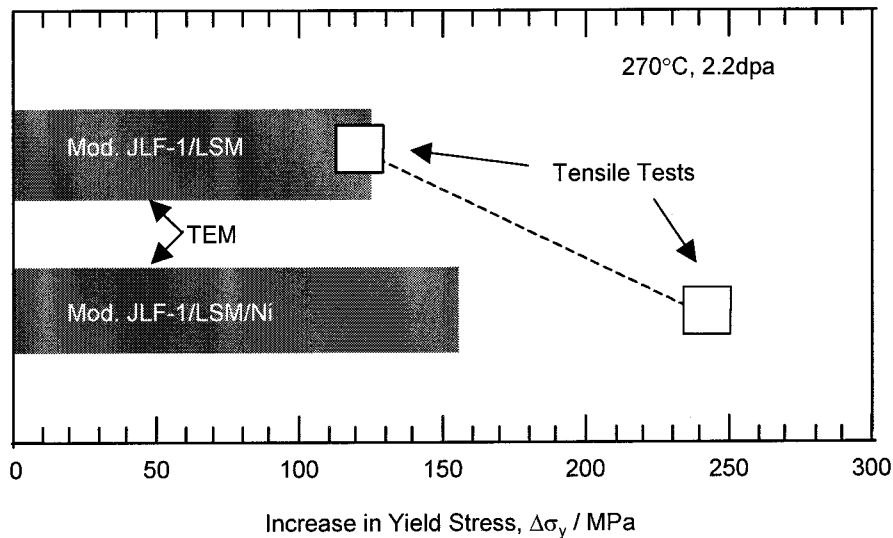


図3.4.5 ATR270°C照射したMod. JLF-1/LSMとMod. JLF-1/LSM/Niに対する微細組織からの照射硬化量の評価。

一方、格子間原子型転位ループの形成が確認された ATR 照射材に関しては、図 3.3.10 に示した欠陥密度と平均サイズをオロワンの式に適用して、照射硬化量の見積もりを図 3.4.5 のように行った。強度因子 α は 0.2 を採用した。Ni を含まない Mod. JLF-1/LSM では、引張試験の結果と微細組織からの評価はよく一致したが、Ni 添加鋼である Mod. JLF-1/LSM/Ni では微細組織から評価した硬化量では引張試験の結果を説明することができなかった。図 3.3.8 に示した 270°C照射した Mod. JLF-1/LSM/Ni の TEM 写真から判断すると、観察された格子間原子型ループやブラック・ドットは Mod. JLF-1/LSM と比較して非常に微細であり、TEM では観察できないサイズの欠陥の存在が予測される。Ni 添加が格子間原子型ループを微細化する原因として、Ni と自己格子間原子の相互作用による自己格子間原子の移動度の低下が考えられる。Yoshida らは、超高圧電子顕微鏡 (HVEM) を用いた電子線照射による損傷組織発達過程のその場観察を行った[146, 147]。それによると、表 3.4.1 に示したように、Fe-10Cr モデル合金に対する 1%Ni 添加は、自己格子間原子の実効移動エネルギーを 0.35eV から約 0.9eV までに上昇させている。この原因として、転位ループ周辺に Ni 原子が濃縮していることから、Ni が自己格子間原子との混合ダンベルを形成し、自己格子間原子の実効移動エ

エネルギーを上昇させることにより、転位ループの形成挙動を Fe-10Cr 合金に比べて約 100°C 上昇させている。このような挙動は本研究においても、270°C 照射した Mod. JLF-1/LSM と 348°C 照射した Mod. JLF-1/LSM/Ni における損傷組織が良く似ていることから伺える。以上の考察から、Ni 添加による照射硬化そして脆化の促進は、Ni と自己格子間原子との混合ダンベルの形成による格子間原子型転位ループの微細・高密度化によるものと考えられる。

また、Ni を含まない鋼種においては照射温度 220-350°C において、照射量の 1/4 乗に従って降伏応力の上昇が見られたのに対し、Mod. JLF-1/LSM/Ni における照射硬化は、Ni を含まない鋼種とは異なる照射量依存性を示した。そのことが明確に理解されるのは、JMTR80°C 照射した Mod. JLF-1/LSM/Ni においてであり、照射量の 1/2 乗に従って降伏応力の顕著な上昇が見られた。これは、I-cluster 密度の照射量依存性におけるステージ II もしくは II' に対応すると考えられる。すなわち、混合ダンベルの形成により自己格子間原子の移動度が減少したため、I-cluster 密度はカスケードにより直接形成される量に比例することになり、照射量に対して単純に比例して増加することになると考えられる。

以上の議論では点欠陥挙動に及ぼす Ni 添加効果についてのみ言及したが、Ni 添加による微細な照射誘起析出物の形成が生じている可能性もある。Gelles らは、1.5% の ^{59}Ni , ^{60}Ni , 天然 Ni をそれぞれ添加した Fe-12Cr 合金に関して、HFIR を用いて 300, 400, 500, 600°C にて約 7dpa の照射を行った[148, 149]。この時のヘリウム生成量は、Ni 同位体の種類に応じて 2~90appm であった。シェア・パンチ試験によると、75appm までのヘリウムは、実効せん断降伏応力や最大せん断強度にほとんど影響を与えなかった（すなわち同位体の違いによる硬化量の差が見られなかった）。また、Fe-12Cr 合金では、照射温度 300°C と 400°C の試料間に照射硬化量の違いがほとんど見られなかったが、Fe-12Cr-1.5Ni 合金の強度は照射温度に大きな影響を受けており、300°C 照射材の方が 400°C 照射材よりも顕著な硬化を示している。微細組織観察によると、400°C 照射した Ni 添加合金では析出が確認されており、亜粒界上でその傾向が顕著であった。300°C 照射材では析出は確認されていないが、おそらく析出物が微細なためであるとしている。

本研究では、Ni の析出を確認することは出来なかったが、Ni 添加鋼における強度の照射温度依存性は Gelles らの結果と大筋で一致している。図 3.4.5 で示した微細組織からの硬化量の見積もりでは、Ni 添加鋼において引張試験結果との一致が良くなかった。この原因として、Ni 添加による損傷組織の微細化を先に取り上げたが、TEM で観察できなかった硬化因子が Ni 析出物であることは否定できない。しかし、点欠陥挙動に対する Ni 添加の効果を考えれば、損傷初期過程では Ni と自己格子間原子の混合ダンベルの集積を考えたほうが自然であり、この過程が進んでいくと Ni の析出に繋がるかもしれない。

以上のようにフェライト鋼への Ni 添加は、照射後組織に顕著な影響を与える。それ故、照射硬化・脆化挙動も非添加鋼のそれとは異なり、ヘリウム効果を調べることは相応しくない。

3.4.2.2 従来の研究の再検討

上述の議論から、Klueh らの Ni 添加法を用いたヘリウム効果の実験結果を再検討する必要がある。彼らの研究で観察された Ni 添加法による DBTT の顕著な上昇は比較的高温での照射で生じているため、本研究によって提案された Ni 添加による格子間原子型転位ループの微細化による照射硬化の促進を原因とすることは考えにくい。しかし、Klueh らが行った HFIR 照射は、照射温度制御を試料とキャプセル間のガスギャップによって行っており[56]、照射終了時の低温照射が避けられない方法を用いていた。本研究の JMTR<170°C照射において、<0.15dpa という少ない照射量でも顕著な硬化の促進が生じていたことを考慮すると、照射終了時における低温照射による硬化を否定することはできない。また、オーステナイト鋼において報告されているような、粒界への Ni の偏析が生じている可能性もある。このような状況では、粒界近傍に偏った分布をした Ni から He が生成することによって粒界への He の蓄積を促進し、シャルピー試験後に観察された粒界割れの原因となることも十分考えられる。

3.5 結論

低放射化 9Cr-2W マルテンサイト鋼における中性子照射効果の照射量・照射温度依存性と Ni 添加の影響を調べた。主な成果は以下のとおりである。

- 1) 低放射化マルテンサイト鋼の照射硬化は、220~350°Cの照射温度、照射量約 2dpa までの範囲において、照射量の 1/4 乗に比例して増加する。
- 2) 低放射化マルテンサイト鋼における主要な照射硬化因子は、非熱的応力の原因となるオロワン障害物であると考えられる。
- 3) 低放射化マルテンサイト鋼の照射硬化に対するマイクロボイドの寄与は小さい。
- 4) 低放射化マルテンサイト鋼における主要な照射硬化因子として、格子間原子型転位ループを提案した。
- 5) 低放射化マルテンサイト鋼への Ni 添加は、格子間原子型転位ループを微細・高密度化するため、特に低温照射時において照射硬化・脆化を促進する。
- 6) 今後、低放射化マルテンサイト鋼における He 脆化の研究に、Ni 添加法を用いる場合には、Fe-Ni ダンベルの形成を考慮する必要がある。

第4章 低放射化マルテンサイト鋼の照射効果に及ぼす

ヘリウムの影響

4.1 緒言

核融合炉環境下で用いられる構造材料にとって、核変換 He によって生じる材料特性の変化（例えばスエリングや脆化の促進）が、極めて深刻な劣化要因になると懸念されているが[150]、14MeV 中性子による高線量の照射場が存在しないため、核変換 He が機械的性質に与える影響に関する研究は、核変換 He 模擬環境下において行われてきた。

低放射化フェライト鋼におけるヘリウム効果の研究は、近年になって盛んに行われてきているが、先行して多くのデータを提示しているのが、米国 ORNL (Oak Ridge National Laboratory) における Klueh らによるフェライト系従来鋼のヘリウム脆化に関する研究である[56-63]。第3章で既に述べたように、彼らは 2%Ni 添加した 9Cr-1Mo 鋼や 12Cr-1Mo 鋼を HFIR 照射することによって He 生成を模擬するアイソトープ・テーラリング法を用いたところ、図 3.1.1 に示したように、2%Ni 添加した 9Cr-1Mo 鋼は、400℃、40dpa の HFIR 照射により 200℃もの DBTT の上昇を示した。この原因として、Ni の核変換により生じた 32appm の He が粒界上にキャビティを形成し、粒界割れを引き起こしたためであるとの説明がなされている。Gelles は、これらの結果を He 量に対する DBTT シフト量として、図 4.1.1 のようにプロットし直している[151]。それによると、390-400℃照射においては 2appm までの He により DBTT が急速に上昇し、その後高いヘリウム量までなだらかに上昇している。一方、Materna-Morris らによる B 添加法を用いた研究によると、HFR (High Flux Reactor) 250℃照射した低放射化 7-12CrWVTa 鋼の DBTT シフトは、図 4.1.1 のように He 量にほぼ比例しており、Klueh らの結果と異なる様相を呈している。また、図には Yamamoto らによる JMTR 照射した B 添加鋼の結果も併せて示しているが、この場合 100appm までの He による脆化の促進は見られていない[152]。

このように、低放射化マルテンサイト鋼の He 脆化挙動は、評価手法により異なっており、統一的な見解が得られていない。また、第3章で示したように、低放射化フェライト鋼への Ni 添加は照射後組織と強度特性に著しい影響を与えるため、He 脆化の評価には相応しくない。

本章では、そもそも He の存在により低放射化マルテンサイト鋼の脆化が促進されるのかどうか、という問題に着目した。そのために、He 生成を促進する添加元素を加えることなく多量の He を材料中に導入することができるサイクロトロン He 注入法を用いた。加速器

を用いた He 注入法による He 脆化研究は、一般に He 注入体積が小さいために、適切に脆化度を評価することが困難であった。そこで、本研究では微小試験片技術のひとつであるスモール・パンチ (SP; Small Punch) 試験を用いて延性脆性遷移挙動の評価を行った。また、He と点欠陥との相互作用を調べ、He 注入が微細組織発達過程に与える影響について調べた。

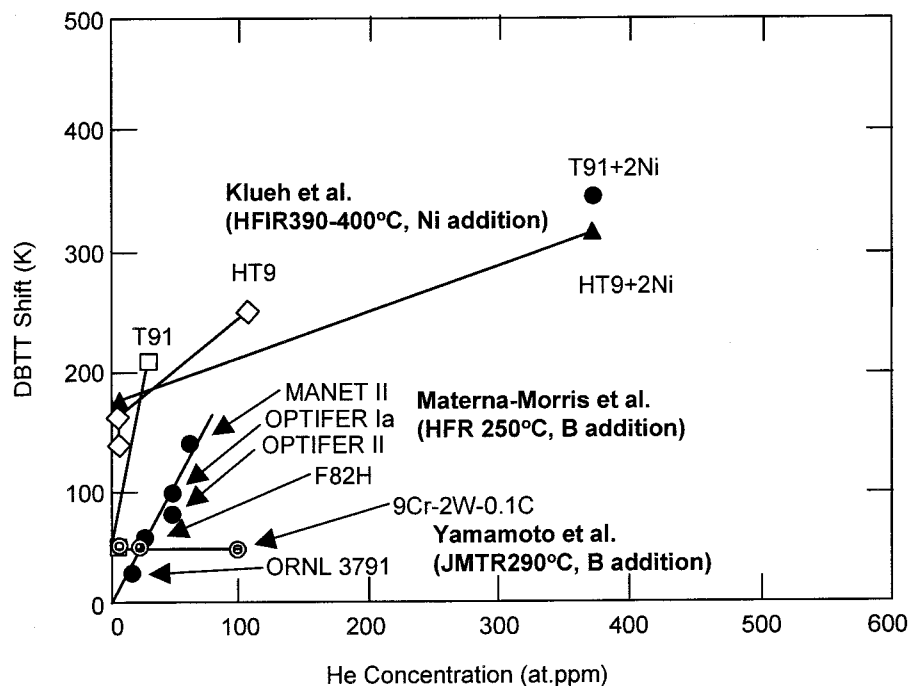


図4. 1. 1 B添加法を用いた低放射化フェライト鋼や、Ni添加法を用いた従来鋼におけるDBTTシフト量のHe濃度依存性。括弧の中は照射条件とHe生成法を記している。([151, 152]をもとに作成)

4.2 実験方法

4.2.1 試料

用いた試料は JLM-1 である (第 2 章参照)。照射試料として 3mmφ の TEM ディスクを用意した。TRIM コードによると、Fe 中における 36MeV の α 粒子の飛程は 0.23mm と計算されたため、試料の厚さは 0.22mm とした。

4.2.2 サイクロトロン照射

用いた加速器は、東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター (CYRIC) に設置された AVF サイクロトンである。サイクロトロンについては第 2 章で説明した。本研究では、サイクロトロンによって発生した 36MeV の α 粒子を、エネルギー・ディグレーダー

を用いて、試料の厚さ方向へ 265 ステップの He 濃度ピークの重ね合わせによる均一注入照射を行った。サイクロトロン照射のために作製した試験片ホルダーの形状は、図 4.2.1 のようになっており、10 枚の直径 3mm の TEM ディスクを、照射面の反対側にインジウムを塗布し、その上からネジにより一枚ごとに固定した。照射温度の測定は、熱電対を試料近傍のホルダーに設置して行い、照射中の指示温度は約 80℃であった。試料に接着したインジウムの融点は約 150℃であるが、注入後に溶融した痕跡が見られなかったため、注入温度は 150℃以下であるということが保証されている。

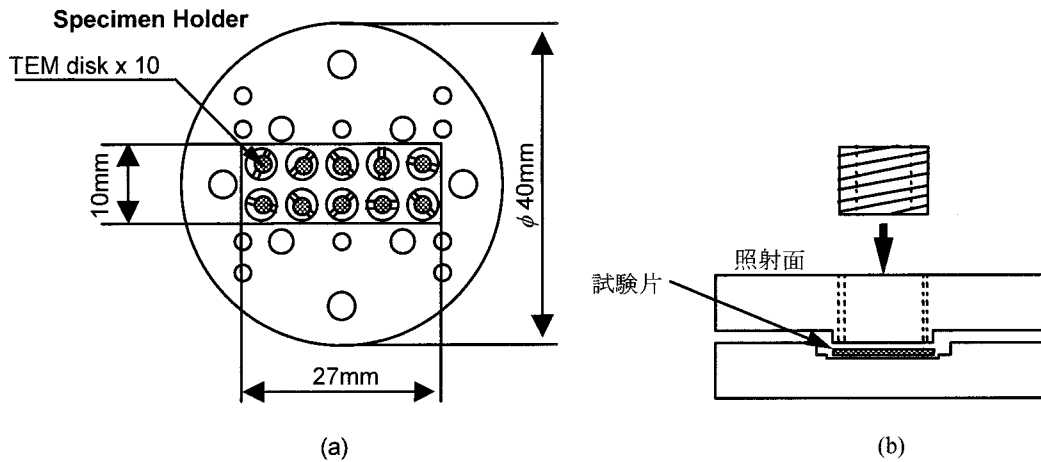


図4.2.1 Heイオン照射に使用した(a)試験片ホルダーの概略図と、(b)断面図。

本研究では、He 量 120appm[42]と 580appm の注入実験を行った。表 4.2.1 に示したそれぞれの注入条件から分かるように、本注入法による He 生成（注入）速度は、通常の核分裂炉や核融合炉での条件よりも極めて高いことを言及しておく。

表4.1.1 サイクロトンHe注入照射条件

Implanted Particle	36MeV α	
Implantation Temperature	<150°C	
Implanted Range	0.23 mm	
Displacement Dose	0.048 dpa	0.226 dpa
Implantation Time	10.5 hour	72 hour
He Concentration	120 appm	580 appm
Damage Rate	1.3×10^{-6} dpa / s	8.7×10^{-7} dpa / s
He Implantation Rate	2.5×10^3 appm / dpa	

※JMTR: 6.6×10^{-8} dpa / s, 0.1 appm / dpa

※Fusion reactor: 3.6×10^{-7} dpa / s, 10 appm / dpa

4.2.3 照射後試験

SP 試験は、東北大学金属材料研究所大洗施設に設置された INTESCO 社製引張試験機を用いて行った（試料ホルダーを治具で挟み込み圧縮荷重を与えた）。クロスヘッド速度は 0.2mm/min で、試験温度は全て 77K～室温である。冷媒としてイソペンタンを用いた。SP 試験の詳細は第 2 章に示した。

マイクロビッカース硬さ試験は、東北大学金属材料研究所 α 放射体実験室に設置された AKASHI 社製 MVK-E 硬さ試験機を用いて行った。荷重 0.2kg, 負荷時間 15s である。

TEM 観察は、東北大学金属材料研究所 α 放射体実験室に設置された JEOL JEM-2010S を用いて行った。

陽電子寿命測定は、東北大学金属材料研究所 α 放射体実験室に設置された装置を用いて行った。測定温度は室温である。

照射後焼鈍は、真空 (1×10^{-7} torr) 中で行った。等時焼鈍における焼鈍時間は 30min である。また、一部の試料については、等時焼鈍時のヘリウム脱離挙動について調べた。この時の等時焼鈍時間は 15min であり、その間のヘリウム分圧を四重極質量分析計によって計測した。

4.3 実験結果

4.3.1 SP 試験

He 注入した JLM-1 鋼の SP 試験による延性脆性遷移曲線を図 4.3.1 に示す。He 注入量の増加と共に、遷移曲線が高温側へシフトしていることが分かる。SP-DBTT の上昇 (SP- Δ DBTT) は、表 4.3.1 に示したように、120appm 注入材に対して 26K, 580appm 注入材に対して 39K であった。第 2 章の図 2.5.5 で示したように SP-DBTT とシャルピー試験によって得られる DBTT (CVN-DBTT) の経験的な相関則、

$$\text{CVN-DBTT(K)} = 2.5 \times \text{SP-DBTT(K)}$$

を用いて SP- Δ DBTT を CVN- Δ DBTT に変換すると、120appm 注入材に対して 65K, 580appm 注入材に対して 98K であった。

580appm 注入材に対する SP 試験後の SEM を用いた破面観察結果を図 4.3.2 に示す。延性遷移曲線において脆性域である 112K での試験後の破壊様式は全てへき開破壊であり、粒界割れは観察されなかった。また、延性域である 122K における破壊様式は延性破壊であった。以上のように、破壊様式と延性脆性遷移挙動の間に良い相関が見られた。

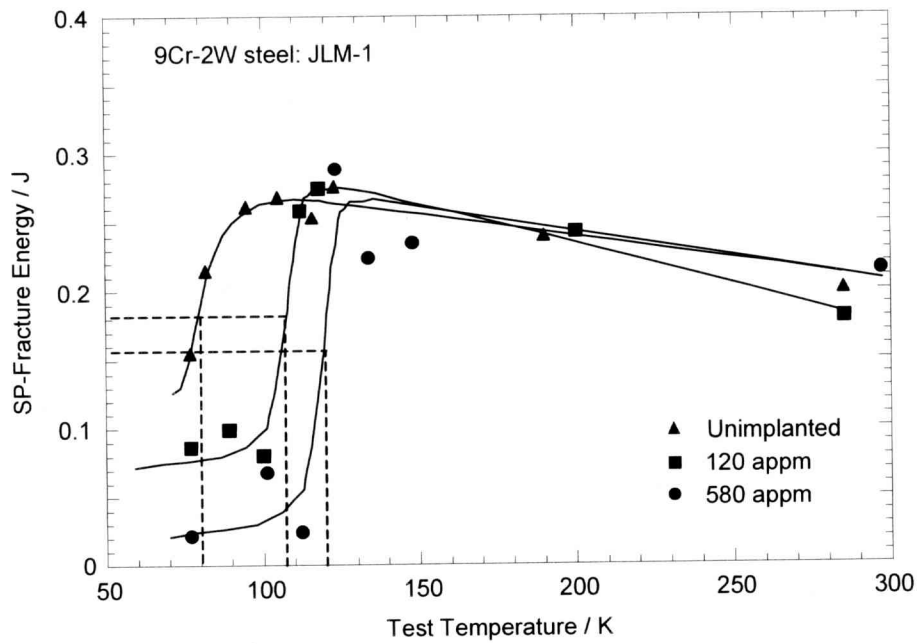


図4.3.1 SP破断エネルギーの試験温度依存性に及ぼすHe注入の影響.

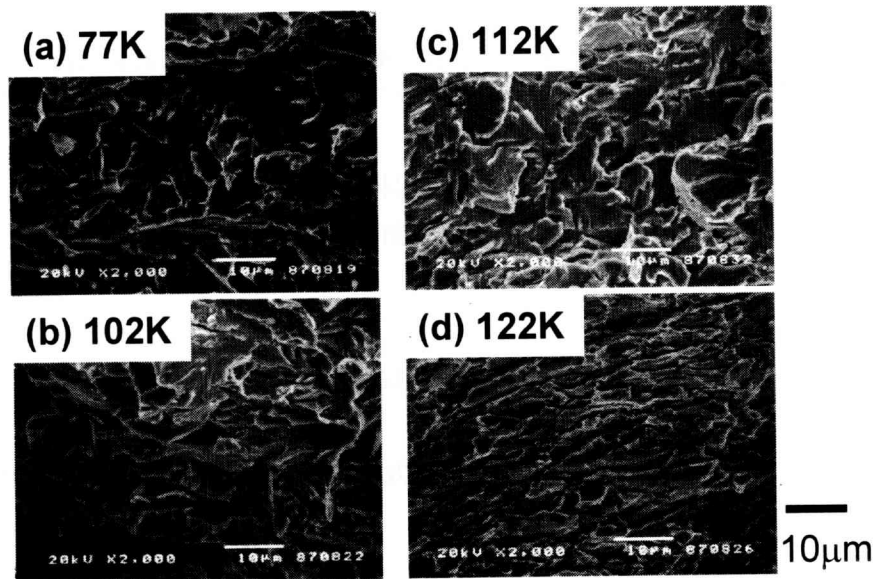


図4.3.2 580appm He注入材に対するSP試験後の破面観察結果.

4.3.2 硬さ試験

図 4.3.3(a)に, 120appm, 580appm 注入した 3mmφ TEM ディスクにおけるビッカース硬さの分布を示す. He 注入により, 注入領域にわたってほぼ均一な硬化が生じた. 図 4.3.4(b)に, 注入面とその背面におけるビッカース硬さの He 注入量依存性を示す. He 注入は照射表

面からその背面に渡って硬化を引き起こし、注入量に従って硬化量は増加した。

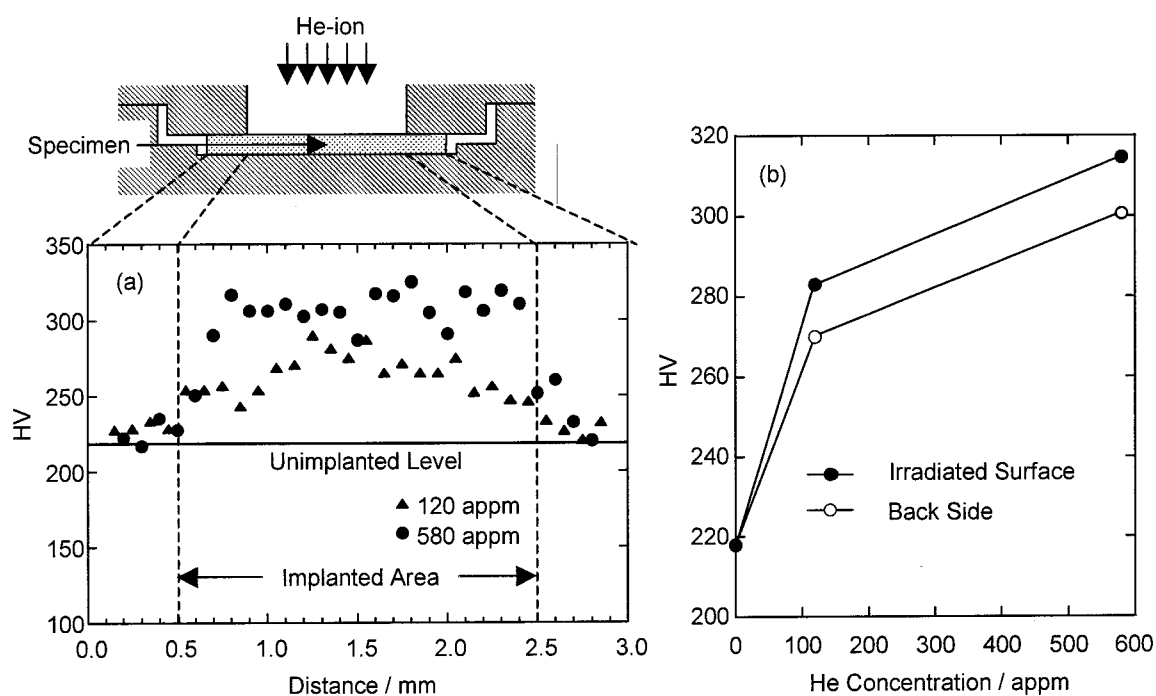


図4.3.3 120, 580appm He注入後のビッカース硬さ変化. (a)照射面におけるビッカース硬さ分布, (b)照射面とその背面におけるビッカース硬さ平均値のHe濃度依存性.

図 4.3.4 に、未照射試料や、JMTR 照射試料における低放射化 9Cr マルテンサイト鋼のビッカース硬さと引張試験による降伏応力との関係を示す。図には第 3 章の試験で得られたデータをプロットしている。この結果により、

$$\sigma_y \text{ (MPa)} = 1.54 \times H_V + 213 \quad (220 < H_V < 320) \quad (4-3-1)$$

という関係が得られた。よく用いられる経験式である

$$\Delta\sigma_y = 3 \Delta H_V \quad (4-3-2)$$

表4.3.1 未注入材, He注入材のビッカース硬さとSP-DBTTの測定値と, それらから求めた降伏応力値とCVN-DBTT.

	HV	σ_y / MPa	SP-DBTT / K	CVN-DBTT / K
Unimplanted	218	549	81	202
120 appm	285	652	107	267
580 appm	314	697	120	300

は良いフィッティングを示さなかった[153]。上式を用いて降伏応力を評価した結果を表4.3.1に示す。

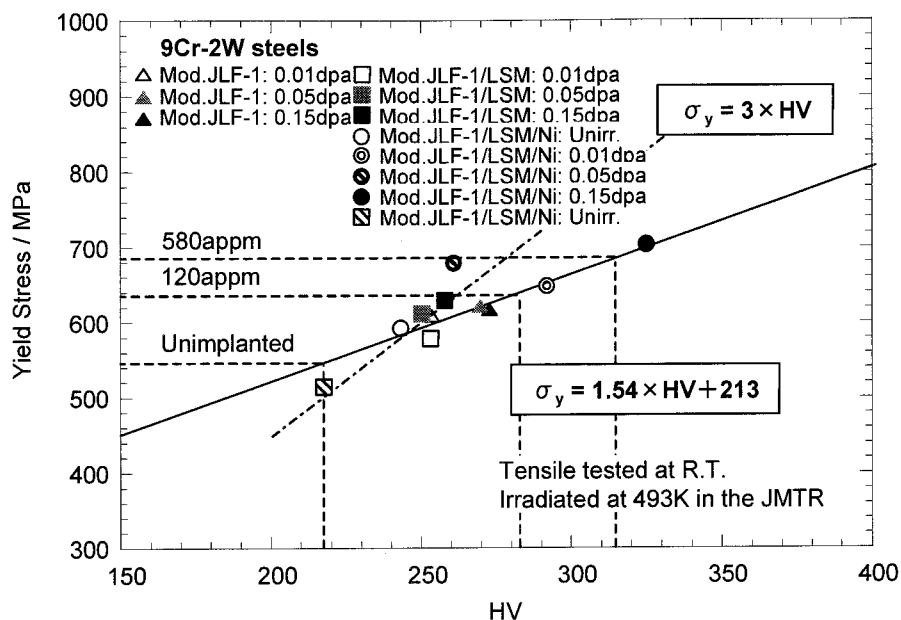


図4.3.4 引張降伏応力とビッカース硬さとの関係。

4.3.3 陽電子寿命測定

金属中の He が空孔や空孔集合体と強い相互作用を持ち、He-V 複合体を形成することは良く知られているが、フェライト鋼における He の挙動は明確ではない。これまでに述べてきたように、陽電子寿命測定は微小な空孔型欠陥の検出に威力を発揮する方法である。そこで、本研究においても低温 He 注入下での空孔型欠陥挙動を調べるために、陽電子寿命測定を行った。

図4.3.5に、He 注入材における陽電子寿命 (τ_1 , τ_2) と強度 (I_2) の照射量依存性を、JMTR80°C照射材と比較して示す。He 注入材における I_2 は、中性子照射材のそれよりも大きく、また長寿命成分 τ_2 は短かった。

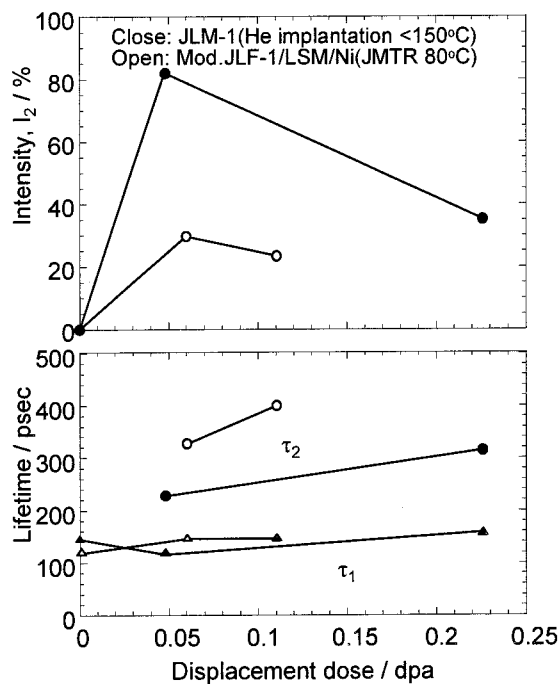


図4.3.5 He注入材と中性子照射材 (JMTR80°C) における陽電子寿命の照射量依存性。

4.3.4 照射後焼鈍実験

He 注入材における照射硬化の等時焼鈍回復挙動を調べた結果を図 4.3.6 に示す。同図に併せて示した 220℃中性子照射材と比較して分かるように、He 注入材における照射硬化の回復温度は 400℃以上であり、約 350℃で回復が始まった中性子照射材よりも高く、600℃焼鈍後においても回復は完了していない。

陽電子寿命の等時焼鈍回復挙動を図 4.3.7 に示す。80℃中性子照射材の結果も併せて示す。He 注入材における長寿命成分の回復挙動は、350℃で長寿命成分が消失した中性子照射材に比べて極めて複雑であり、600℃焼鈍によっても長寿命成分は残存していた。

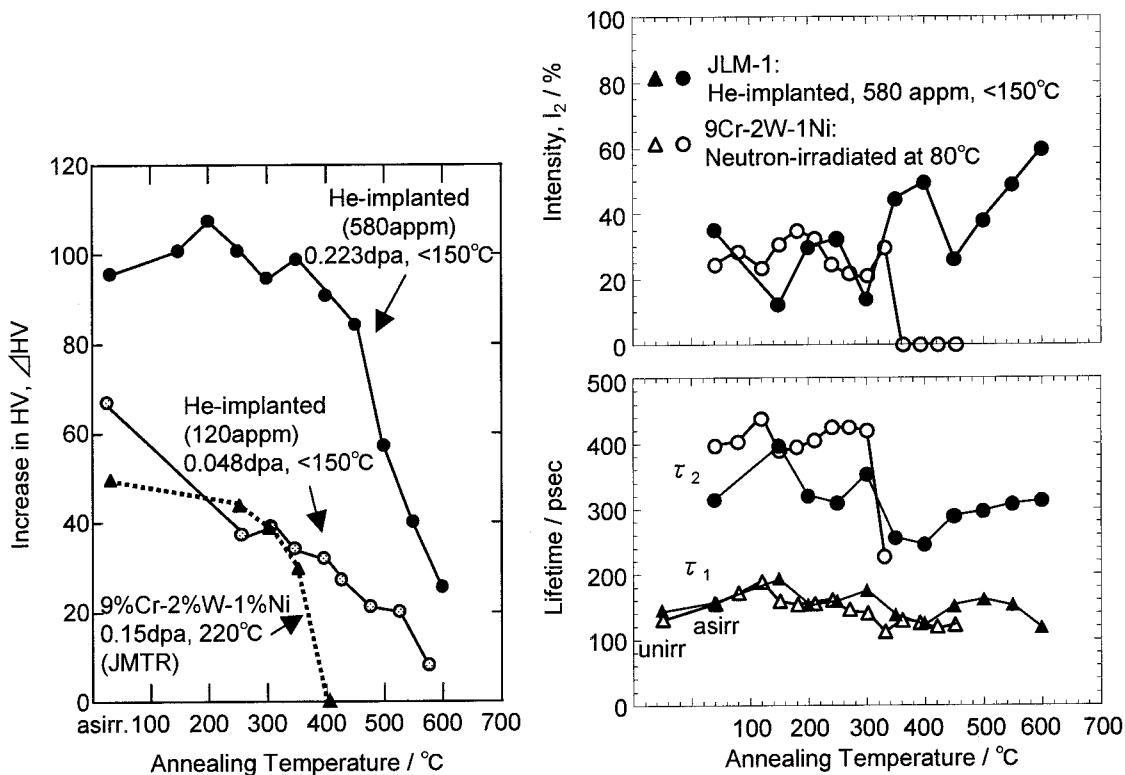


図4.3.6 He注入したJLM-1におけるビッカース硬さの等時焼鈍回復挙動。 図4.3.7 He注入したJLM-1における陽電子寿命の等時焼鈍回復挙動。

注入直後はキャビティ形成が確認されなかったが、600℃まで焼鈍した試料を薄膜化してTEM観察を行ったところ、図4.3.8a)のように多数のキャビティが観察された。照射後焼鈍によって形成したキャビティは主に転位線上やラス境界上に存在していた。図4.3.8a)のように、キャビティが形成された状態である600℃焼鈍材に対して、77KでのSP試験を行ったところ、図4.3.8b-d)のように破壊様式はHe注入まま材と同様にへき開破壊であり、粒界割れは観察されなかった。

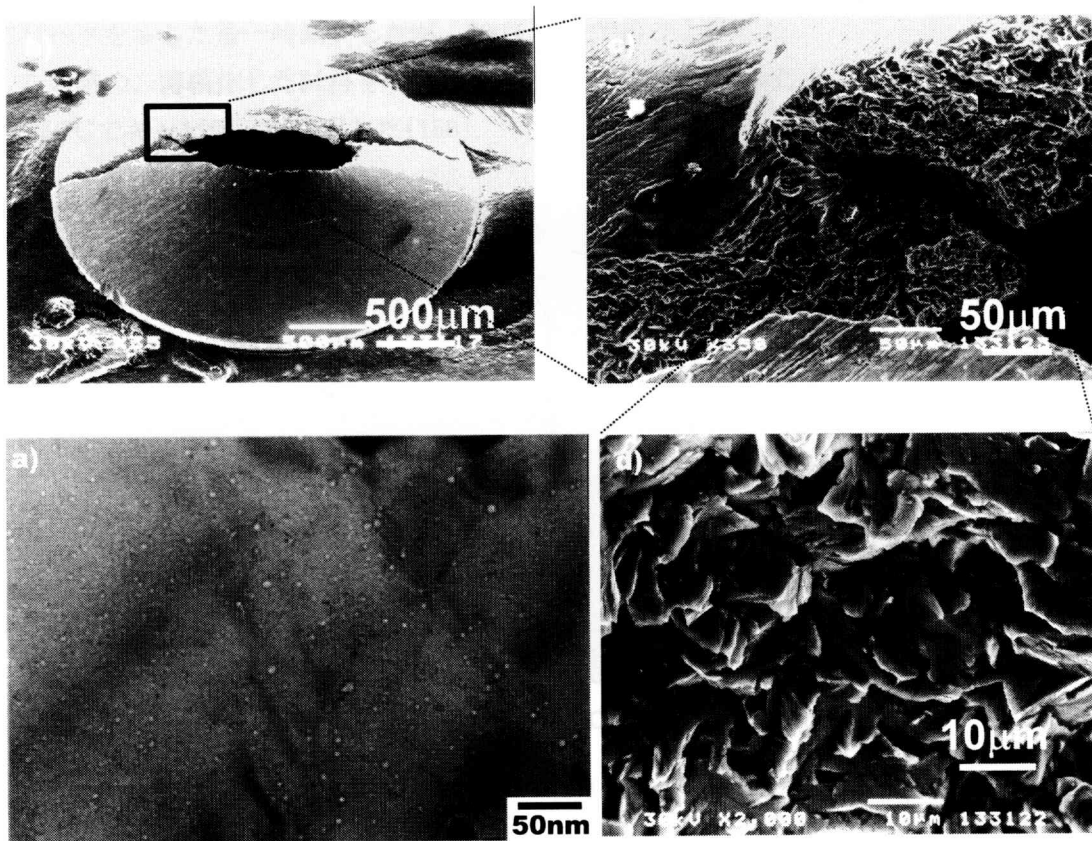


図4.3.8 580appmHe注入したJLM-1の600℃までの等時焼鈍後のa)微細組織と、b-d)SP試験を行った試料の破面観察結果。

580appmHe 注入した JLM-1 を薄膜化し、照射後焼鈍過程における He 放出挙動を調べた結果を図 4.3.9 に示す。横軸は焼鈍温度であり、縦軸に各焼鈍温度で 15 分間保持した際の He 分圧を示す。 $P_{measured}^{He}$ を測定した放出量、 $P_{measured}^{B.G.}$ を測定したバックグラウンドの放出量とすると、正味の He 放出量 P_{net}^{He} は、

$$P_{net}^{He} = P_{measured}^{He} - \left(\frac{P_{B.G.}^{total}}{P_{He}^{total}} \right) P_{measured}^{B.G.} \quad (4-3-3)$$

と与えられる。正味の He 放出量は 300℃焼鈍により上昇した後、450℃まではほぼ一定値を示した。その後、He 放出量は増加して、約 550℃

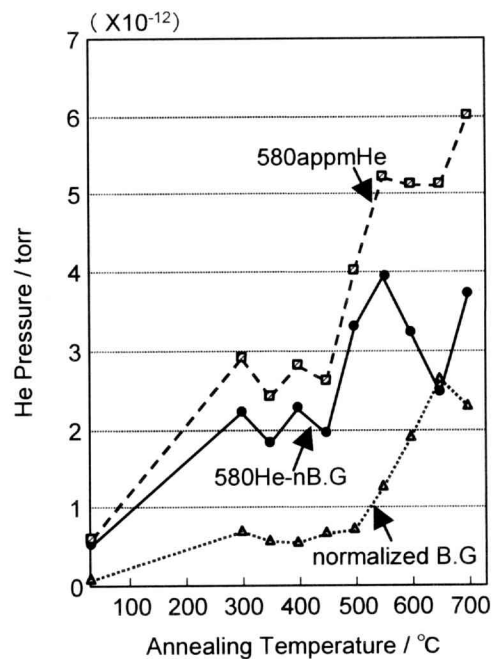


図4.3.9 580appmHe注入したJLM-1における15min焼鈍によるHe放出量変化。

にピークを示した後一時減少したが、700°C以上で再び上昇した。

この時の、薄膜化した試料を焼鈍の度ごとに TEM 観察を行ったところ、図 4.3.10 のように 450°C でキャビティが出現した[156]。

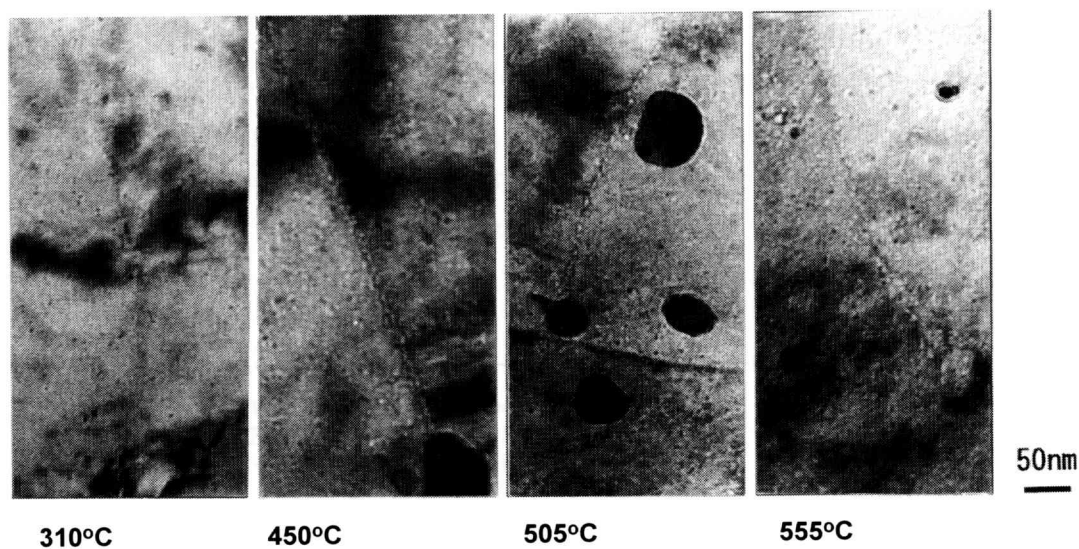


図4.3.10 580appmHe注入したJLM-1の等時焼鈍による微細組織発達挙動[156]。

4.4 考察

4.4.1 ヘリウム注入による機械的特性変化

低放射化マルテンサイト鋼の照射硬化の照射量依存性に及ぼす He の影響を調べるために、He 注入による硬化と JMTR 照射による硬化を比較したのが図 4.4.1 である。横軸には弾き出し損傷量の 1/4 乗、縦軸には照射硬化量を示した。JMTR 照射による硬化は引張試験によって得られた降伏応力の上昇値であり、He 注入による硬化は硬さ試験から求めた値である。JMTR 照射での He 生成

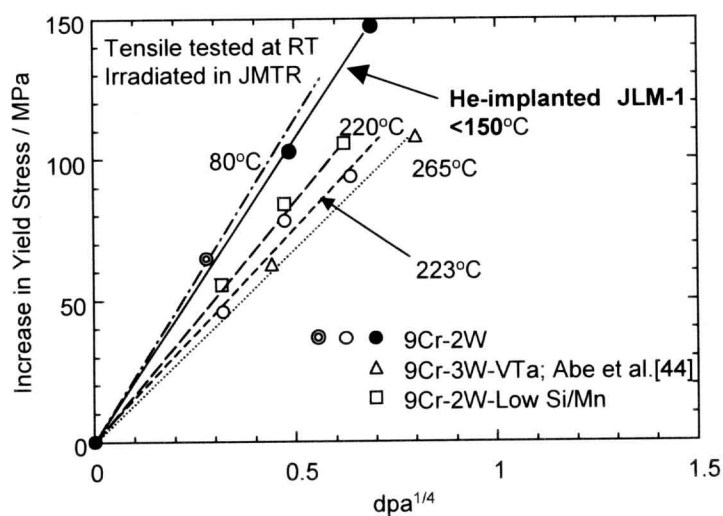


図4.4.1 低放射化マルテンサイト鋼における照射硬化の照射量依存性。弾き出し損傷量の1/4乗に対してプロットした。

量は 10^{-2} appm 程度である。第 3 章で示した照射硬化の照射量に対する $1/4$ 乗則は、He 注入照射の場合にも適用することができた。また、図における直線の傾きは照射温度に依存しているが、He 注入照射材における直線の傾きは中性子照射温度 80°C と 220°C の間にあり、He による照射硬化の促進は見られなかった。

軽水炉压力容器鋼の照射脆化研究において、 ΔDBTT と $\Delta\sigma_y$ には比例関係が有ることが経験的に知られている[136]。ここで、図 4. 4. 2 に、JMTR や FFTF/MOTA 照射した低放射化 9Cr-2W マルテンサイト鋼や従来鋼 (9Cr-1Mo) における、 ΔDBTT と $\Delta\sigma_y$ の関係を示す[45]。照射量や照射温度などの照射条件の違いに関わらず、 ΔDBTT と $\Delta\sigma_y$ には概ね比例関係の有ることがわかる。本研究で得られたヘリウム注入材の ΔDBTT においても、He 量の少ない原子炉照射材と同様の比例関係を持っており、He 注入による脆化の促進は見られなかった。

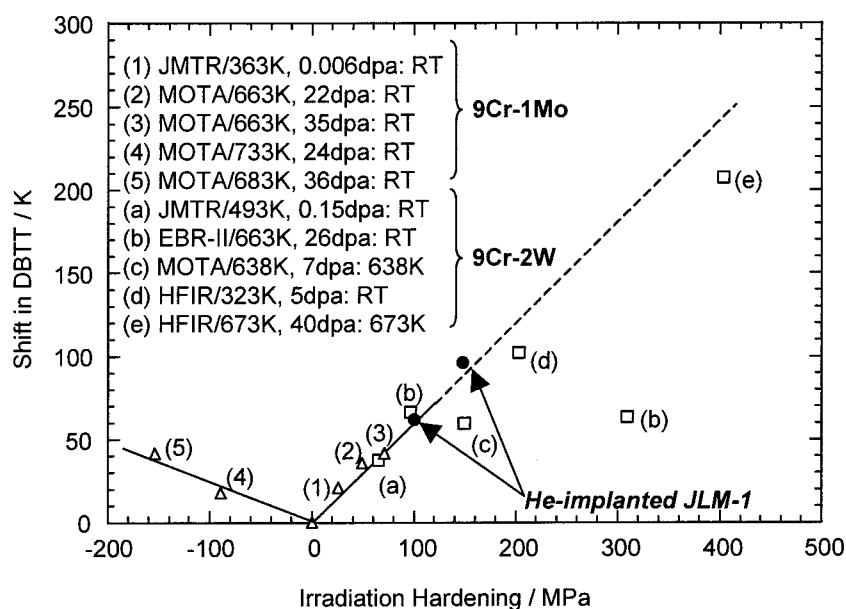


図 4. 4. 2 JMTR, FFTF/MOTA, HFIR照射した9Cr-1Mo鋼や低放射化マルテンサイト鋼におけるシャルピー試験から得たDBTTシフト量の照射硬化量依存性[45]と、He注入したJLM-1鋼における結果。

図 4. 1. 1 で示した ΔDBTT の He 濃度依存性に本研究による結果を合わせて示すと、図 4. 4. 3 のようになり、Yamamoto らによる B 添加法の結果とほぼ一致する傾向を示した。本研究における 580appm という He 濃度は、これまでに得られている DBTT シフトの及ぼす He の影響に関する研究の中で最も高いにも関わらず、脆化の促進が見られなかったことは特筆すべきことである。しかし、照射温度が $<150^{\circ}\text{C}$ であり、他の研究に比べて低いことを言及しておく。

以上の結果から、本研究における $<150^{\circ}\text{C}$ 、580appm までの He 注入による脆化は、主に照射損傷による点欠陥集合体の形成によるものであり、He の存在によって脆化が促進されることはなかった。

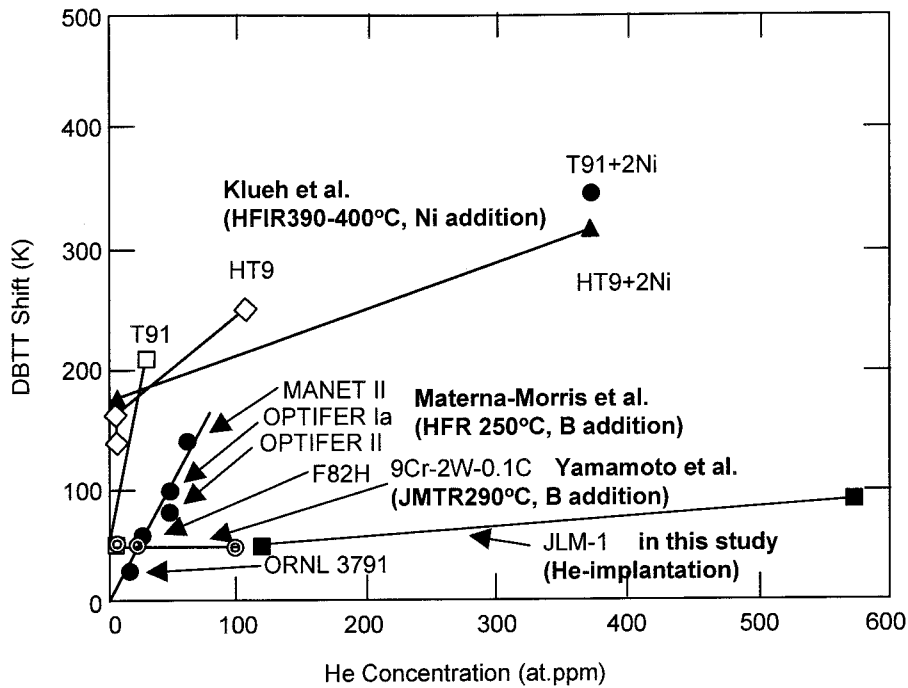


図4.4.3 種々のHe生成法によるDBTTシフト量のHe濃度依存性の結果と本研究による結果との比較.

4.4.2 低放射化マルテンサイト鋼におけるヘリウム・トラッピングサイト

本研究では、He 注入後の試料においてはキャビティの形成は見られなかった。これは、注入温度が低いため TEM による観察可能なサイズまで成長しなかったためと考えられる。そこで、TEM 観察よりも微小な空孔型欠陥集合体を検出することが可能な陽電子寿命測定による結果を検討する。第2, 3章で示した陽電子の捕獲モデルを適用すると、図4.3.6の結果からサイズ (N_V ; 空孔型欠陥集合体に含まれる空孔の数) と密度 (C_V) を評価することが出来る。陽電子寿命測定により検出した空孔型欠陥集合体 (V-cluster) に含まれる全空孔量は $C_V N_V$ で与えられ、He/V 比 (R) は、

$$R = C_{He} / (N_V C_V) = C_{He} / (\kappa / \mu_{IV}) \quad (4-4-1)$$

のように与えられる。注入した全ての He が陽電子寿命測定により検出した空孔型欠陥集合体に捕獲されたとすると、580appmHe 注入材における He/V 比は 110 となる。He/V 比は 10 を越えることはないということが、SANS などの実験結果や[154]、理論計算結果[155]によって示されているため、110 という値は明らかに過大評価である。このような不一致の原因として2種類の効果が考えられる。ひとつは、図2.4.6で示したHeの存在による陽電子寿命の短縮による効果である。Al 中で500psの寿命を持つV-clusterは、He/V比が2になる

と V-cluster 中の電子密度の増加により 200ps までに寿命が縮まる。しかし、このような He による寿命短縮効果を考慮しても、今回得られた He/V 比(110)はあまりに大きく、他の理由を考える必要がある。他の原因として、He が V-cluster のみならず他のトラッピング・サイトにも捕獲されている可能性が指摘される。

Hasegawa らによるサイクロトロン照射を用いての He 注入後の 9Cr-2W 鋼と 9Cr-1Mo 鋼の引張試験後の組織観察によると、(1) 260-300°C, 300appm(0.045dpa)の照射では 500°C以下での試験では照射欠陥集合体は観察されなかったが、600°C以上では小さなバブルがラス境界と転位上に形成されていた、(2) 400~600°C照射では何れの条件においてもバブルが形成された、という結果が報告されている[69,70]。本研究においても、600°Cまでの等時焼鈍後の組織観察によりキャビティが転位やラス境界上に形成していることが確認された。よって、He に対するトラッピング・サイトとして V-cluster の他にラス境界や転位が考えられる。

注入後に薄膜化した試料における微細組織発達と He 放出の等時焼鈍挙動から、TEM による観察可能なキャビティの形成は、He 放出が活発になる 450°Cから確認された。Sugano らによる低エネルギーHe 注入した純鉄や JLM-1 に対する He 昇温脱離測定によると[156]、400~500°Cでは He_nV クラスターからの He 放出と考えられるピークが確認されており、本研究の結果を支持している。すなわち、 He_nV クラスターが分解することによって一部の安定な He_nV クラスターを成長させ、visible なキャビティにまで成長したことが考えられる。また、キャビティが転位やラス境界上に形成していたことを考慮すると、安定な He_nV クラスターの大部分は、転位やラス境界上に形成していたと考えることが妥当である。実際に、Sugano らによる冷間加工と焼鈍により転位密度を変化させた純鉄の He 昇温脱離測定によると、転位に He がトラップされている様子が確認されている[156]。

第 3 章で低放射化マルテンサイト鋼の照射硬化因子を考察し、中性子照射材における照射硬化の回復温度は、陽電子寿命測定による長寿命成分（マイクロボイド）の回復温度よりも高く、照射硬化の回復がマイクロボイドの分解そのものではなく、その後の空孔移動に起因している可能性を指摘した。本章においても、陽電子寿命の回復温度と硬さの回復温度は一致していない。He 注入材では、硬さの回復は 400°C以上で顕著であり、600°C焼鈍でほぼ完全に回復した。しかし、陽電子寿命の回復挙動は中性子照射材と比較して複雑であるが、600°C焼鈍によっても V-cluster が存在していることを示した。これらの結果から、He-V クラスターは硬さに大きく寄与せず、照射硬化の回復温度が中性子照射材に比べて高くなるのは、He が空孔集合体を熱的に安定化するためであると考えられる。

4.4.3 低放射化マルテンサイト鋼の高温 He 脆化

本研究における He 注入温度は<150°Cと低く、キャビティ発達が抑制されているため脆化の促進は見られなかった。この原因として、He が V-cluster や転位、ラス境界などにトラ

ップされているためと考えられるが、He がトラッピング・サイトから逃れることが可能になる高温での照射によって、Klueh らが報告したように粒界上に形成したキャビティに起因する脆化の促進が顕著になる懸念がある。しかし、本研究においては図 4.3.8 に示したように、注入後焼鈍によってキャビティが形成された条件下においても SP 試験による粒界割れは観察されなかった。これは、He 注入後焼鈍によって旧オーステナイト粒界上において特に粗大化したキャビティは形成されなかったためと考えられる。照射後等時焼鈍と高温 He 注入による組織変化が異なることは当然であるが、低放射化マルテンサイト鋼中に多量に含まれている転位やラス境界が、低温 He 注入試験と同様に高温注入下においても粒界への He 輸送を抑制することは十分予測される。ただし、He が転位やラス境界によるトラップから外れる温度以上での使用は、これらの抑制機構が十分に働かない可能性があるため、これらのトラッピング効率や、トラッピング・エネルギー（He-転位の結合エネルギー等）を把握することが必要である。より詳細な研究が待たれるが、Sugano らによる TDS 研究によると、He が転位から離脱する温度は 500~600℃付近であることが報告されており[156]、図 1.4.9 や図 1.4.10 で示した低放射化マルテンサイト鋼のデザイン・ウインドウで描かれた使用可能温度域においては、耐高温 He 脆化特性においても優れた材料であると予測される。今後、より高温での He 注入試験が必要である。

4.5 結論

本研究では、サイクロトロン He 注入法とスモール・パンチ試験法を用いて、低放射化マルテンサイト鋼の延性脆性遷移挙動に及ぼす He の影響を調べた。また、He と点欠陥との相互作用を調べ、He 注入が微細組織発達過程に与える影響について調べた。主な成果を以下にまとめる。

- 1) He 生成の少ない中性子照射材と同程度の照射量 ($<0.3\text{dpa}$) において、580appm までの He による照射硬化の促進は見られなかった。
- 2) He 注入による DBTT の上昇は、弾き出し損傷に起因する照射硬化によって説明され、He による脆化の促進や粒界割れは生じなかった。
- 3) He 注入によって形成される He-V クラスターは照射硬化を顕著に促進することはないが、照射後焼鈍による照射硬化の回復を高温側にシフトさせることが明らかとなった。これは、He が空孔集合体を熱的に安定化するためであると考えられる。
- 4) 低放射化マルテンサイト鋼の優れた耐 He 脆化特性の一因として、マルテンサイト鋼中に多量に存在する転位やラス境界が He をトラップするためと考えられる。

第5章 低放射化マルテンサイト鋼における温度変動照射効果

5.1 緒言

FFTF/MOTA 等を用いた原子炉照射試験において、原子炉の起動時や停止時に設定温度に比べ低い温度での照射が加わることにより、照射後の組織や機械的特性に顕著な影響を及ぼすことが指摘された[93, 157-159]。一方核融合炉実環境下においても、燃焼開始時に、ブランケット構造材料の温度の変動することが実験炉や原型炉の設計で想定されており、構造材料における温度変動照射効果研究の重要性が指摘されてきた[160, 161]。従って、温度変動照射下での材料挙動を調べることは、照射下点欠陥挙動の基礎的知見を得ることのみならず、実際の核融合炉条件下での材料挙動を知る上でも重要である。

我が国では、JMTR による温度変動照射試験を世界に先駆けて行っている。初期の試験では、Kiritani らによって、照射温度を照射中に低温から高温、そして低温へと繰り返し変動させる交番照射の Ni, Cu およびオーステナイト鋼の微細組織発達に与える影響が調べられ、温度変動照射下での点欠陥挙動に関する基礎的な知見が提示されている[162]。

しかし、低放射化フェライト鋼に対して温度変動照射研究が行われたことは無かった。第 3 章で指摘したように、低放射化マルテンサイト鋼の照射効果は照射温度に顕著に依存することからも、温度変動照射の影響が懸念される。そこで本章では、低温から高温へのステップ状温度変動照射や、その繰り返しによる交番照射を行い、低放射化マルテンサイト鋼の微細組織や照射硬化に及ぼす温度変動照射の影響を調べ、温度変動照射下での点欠陥集合・離散過程と機械的特性変化の相関を明らかにすることにより、損傷組織発達の素過程に関する基礎的知見を得ることを目的とする。

5.2 実験方法

5.2.1 照射試験

JMTR を用いて温度変動照射試験を行った。以下にそれぞれの詳細を記す。

5.2.1.1 低温/高温ステップ状温度変動照射 (94M-13U)

94M-13U 照射は JMTR サイクル 115 において実施され、使用した照射孔は Be 反射体領域内 (F-11 位置) である (94M-15U と同一)。図 5.2.1 に照射温度、原子炉出力の履歴を示す。

本照射試験はヒーターを用いた改良型温度制御を用いており、炉の起動・停止時の低温照射を回避している。照射温度は 2 種類の温度履歴のもとで制御された。ここでは、照射中に 220℃から 420℃へ上昇させたものを 220/420℃照射、340℃から 530℃へ上昇させたものを 340/530℃照射と呼ぶ。多段多分割照射リグを使用して、照射サイクル期間中に照射場から途中 2 回のキャプセル引上げを行った。1 回目の引上げは、低温側温度（220 もしくは 340℃）の照射終了直前に行われた。高温側温度（420 もしくは 530℃）到達までの時間は 1h であり、到達の後 2.5h 後に 2 回目の引上げが行われた。その後、3 番目のキャプセルは最後まで高温側温度での照射が行われたが、その間に雷雨停電のためのスクラムで 5h の炉停止があった。この間に中性子照射は全く行われず、また温度も室温に保たれたので、試験結果に影響はないと考えら

れる。高速中性子 (>1MeV) フルエンスは最大 0.9×10^{20} n/cm² であり、弾き出し損傷量に換算すると 0.14dpa であった。この場合の照射時間は 585h である。高速中性子フラックスは 4.3×10^{13} n/cm²s であり、損傷速度は 6.6×10^{-8} dpa/s と計算された。照射途中の昇温前後における 2 回の引上げ時における弾き出し損傷量は、それぞれ 0.053 dpa、0.054 dpa であり、ほぼ等しい。

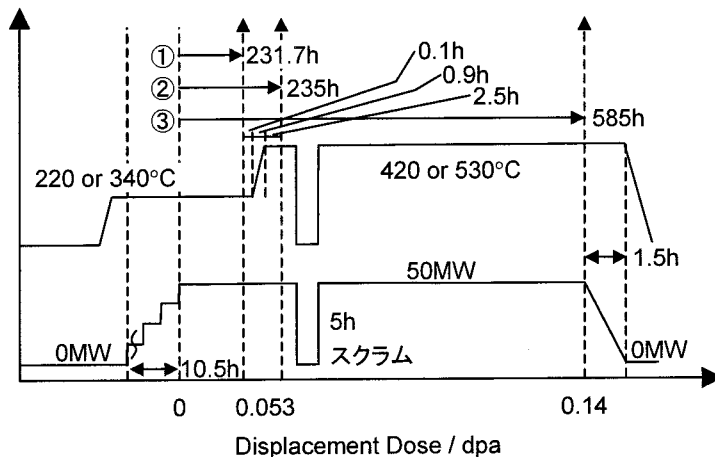


図5.2.1 JMTR94M-13Uにおける照射履歴。

5.2.1.2 交番温度変動照射 (96M-21U)

96M-21U 照射は JMTR サイクル 120 において実施された。本照射試験はヒーターを用いた改良型温度制御を用いており、炉の起動・停止時の低温照射を回避している。図 5.2.2 に示す照射温度履歴から分かるように、本照射は低温側（200℃）から高温側（400℃）への繰り返し温度変動照射であり、通称交番温度変動照射と呼ばれている。弾き出し損傷量は 0.075dpa であり、損傷速度は 3.5×10^{-8} dpa/s であった。

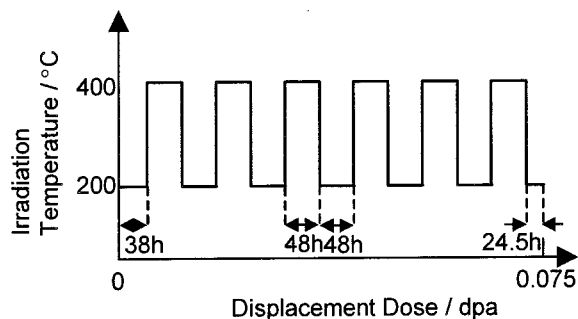


図5.2.2 JMTR96M-21Uにおける照射履歴。

5.2.1.3 低温/高温/低温ステップ状温度変動照射 (97M-33U)

97M-33U 照射は JMTR サイクル 122~124 の 3 サイクルにわたって実施された。使用した照射孔は燃料領域内の K-6 位置である。図 5.2.3 に照射温度、原子炉出力の履歴を示す。本照射試験もヒーターを用いた改良型温度制御を用いているが、最終サイクルの停止時に原子炉がセットバックしたため、炉出力低下中での一定温度の維持ができなかった。また、122 サイクルでは、計画運転停止とスクラムによる停止があった。照射温度は 2 種類の温度履歴のもとで制御された。ここでは、照射中に照射温度を 200℃から 350℃へ上昇、その後 200℃へ下降させたものを 200/350℃照射、300℃から 500℃へ上昇、その後 300℃へ下降させたものを 300/500℃照射と呼ぶ。

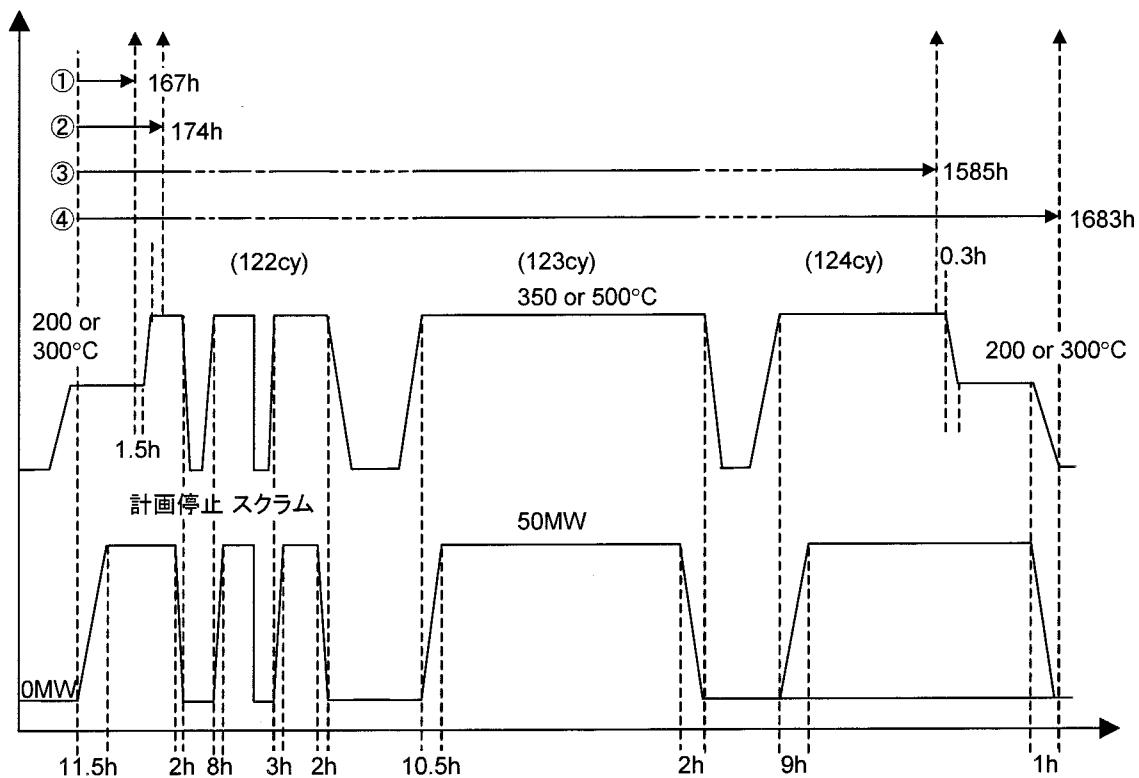


図5.2.3 JMTR97M-33Uにおける照射履歴。

多段多分割照射リグを使用して、照射サイクル期間中に照射場から途中 3 回のキャプセル引上げを行った。1 回目の引上げは、低温側温度 (200 もしくは 300℃) の照射時に行われた。高温側温度 (350 もしくは 500℃) 到達後に 2 回目の引上げが行われた。その後、そのまま高温側温度での照射を行い、3 回目の引上げを行った。4 個目のキャプセルは、低温側への温度変動後、原子炉運転終了時まで照射された。各キャプセルにおける損傷量を表 5.2.1 に示す。高速中性子 ($>1\text{MeV}$) フラックスは、200/350℃照射で $5.0 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$,

300/500℃照射で 1.1×10^{14} n/cm²s であり、弾き出し損傷速度に換算すると、それぞれ 7.4×10^{-8} dpa/s, 1.7×10^{-7} dpa/s であった。高速中性子フルエンスは、200/350℃照射で最大 3.0×10^{20} n/cm², 300/500℃照射で最大 6.7×10^{20} n/cm² であり、弾き出し損傷量に換算すると、それぞれ 0.45dpa, 1.0dpa であった。

表5.2.1 JMTR97M-33Uの各キャプセルにおける損傷量.

Capsule Number	Irradiation Time / s	Displacement Dose / dpa	
		200/350℃	300/500℃
①	6.0×10^5	4.4×10^{-2}	1.0×10^{-1}
②	6.3×10^5	4.6×10^{-2}	1.1×10^{-1}
③	5.7×10^6	4.2×10^{-1}	9.7×10^{-1}
④	6.1×10^6	4.5×10^{-1}	1.0×10^0

5.2.1.4 一定温度照射 (98M-5U)

98M-5U 照射は JMTR サイクル 125~127 の 3 サイクルにわたって実施された一定温度制御照射である。使用した照射孔は燃料領域内の K-6 (97M-33U と同一) である。図 5.2.4 に照射温度、原子炉出力の履歴を示す。多段多分割照射リグを使用して、照射温度は 350, 500℃ の 2 種類の一定温度で制御され、照射サイクル期間中に照射場から途中 4 回のキャプセル引上げを行った。各キャプセルの照射量を表 5.2.2 に示す。1 サイクルの長さが約 1 ヶ月以内に限定されているため、照射は途中で中断されるが、停止時および再開時の照射温度は

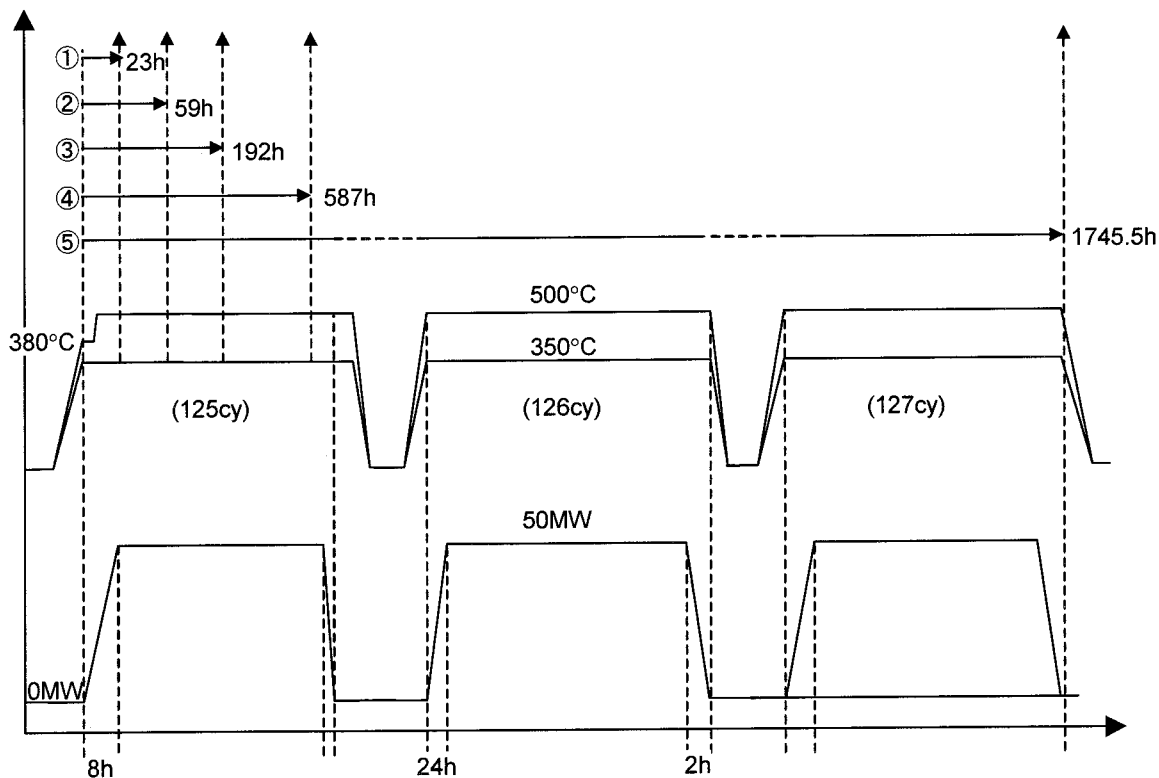


図5.2.4 JMTR98M-5Uにおける照射履歴.

常に一定に保たれている。高速中性子(>1MeV)フラックスは、350℃照射で $6.9 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2\text{s}$, 500℃照射で $1.28 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2\text{s}$ であり、弾き出し損傷速度に換算すると、それぞれ $1.0 \times 10^{-7} \text{ dpa/s}$, $1.9 \times 10^{-7} \text{ dpa/s}$ であった。高速中性子フルエンスは、350℃照射で最大 $4.3 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$, 500℃照射で最大 $8.0 \times 10^{20} \text{ n/cm}^2$ であり、弾き出し損傷量に換算すると、それぞれ 0.65dpa, 1.2dpa であった。

表5.2.2 JMTR98M-5Uの各キャプセルにおける損傷量.

Capsule Number	Irradiation Time / s	Displacement Dose / dpa	
		350℃	500℃
①	8.3×10^4	8.5×10^{-3}	1.5×10^{-2}
②	2.1×10^5	2.2×10^{-2}	4.0×10^{-2}
③	6.9×10^5	7.1×10^{-2}	1.3×10^{-1}
④	2.1×10^6	2.2×10^{-1}	4.0×10^{-1}
⑤	6.3×10^6	6.5×10^{-1}	1.2×10^0

5.2.2 照射後試験

引張試験は、東北大学金属材料研究所大洗施設に設置された INTESCO 社製引張試験機を用いて行った。クロスヘッド速度は 0.2mm/min で、試験温度は全て室温である。

マイクロビッカース硬さ試験は、東北大学金属材料研究所 α 放射体実験室に設置された AKASHI 社製 MVK-E 硬さ試験機を用いて行った。荷重 0.2kg, 負荷時間 15s である。

TEM 観察は、東北大学金属材料研究所 α 放射体実験室に設置された JEOL JEM-2010S を用いて行った。

陽電子寿命測定は、東北大学金属材料研究所 α 放射体実験室に設置された装置を用いて行った。測定温度は室温である。

5.3 実験結果

5.3.1 機械的特性変化

JMTR94M-13U 照射の 220/420℃照射した低放射化マルテンサイト鋼の降伏応力変化を図 5.3.1(a)に示す。何れの鋼種においても、220℃照射によって約 110MPa の照射硬化が生じた。しかし、420℃への昇温直後、これらの照射硬化は消失し、ほぼ非照射材と同様の降伏応力を示した。更に 420℃での照射を続けたところ、照射硬化量は更に減少し、降伏応力は非照射材の値に漸近した。図 5.3.1(b)には 340/530℃照射の結果を示す。340℃照射によって 30MPa 程度の照射硬化を示し、530℃への昇温後にはそれらの硬化は消失しているが、鋼

種によるばらつきが比較的大きい。

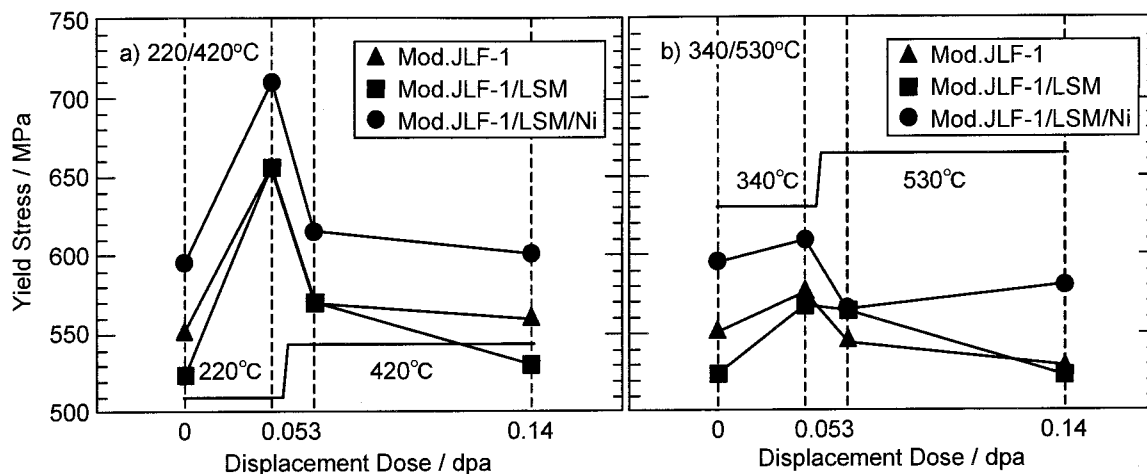


図5. 3. 1 JMTR94M-13U照射した低放射化マルテンサイト鋼の降伏応力変化.
a) 220/420°C照射, b) 340/530°C照射.

照射体積の関係から引張試験片を照射できなかった JMTR97M-33U 照射に関しては、マイクロビッカース硬さ試験によって照射硬化の評価を行った。図 5. 3. 2 (a) に 200/350°C照射した JLM-2 鋼のビッカース硬さ (HV) 変化を示す。200°C照射によって、HV は約 35 上昇した。220/420°C照射と異なり、その直後の 350°Cへの昇温によって HV は減少しなかった。しかし、そのまま 350°Cでの照射を続けると、HV は非照射材の値近くまで減少した。その後、照射温度を 200°Cに低下させて照射を続けたところ、再び硬化傾向に転じた。

図 5. 3. 2 (b) に 300/500°C照射した JLM-2 鋼の HV 変化を示す。300°C照射によって、HV は約 10 上昇した。その後の 500°Cへの昇温により、HV は非照射材よりも低い値まで減少し、照射軟化を示した。しかし、そのまま 500°Cで照射を続けると、照射軟化は回復し、若干の硬化傾向を示した。また、300°C

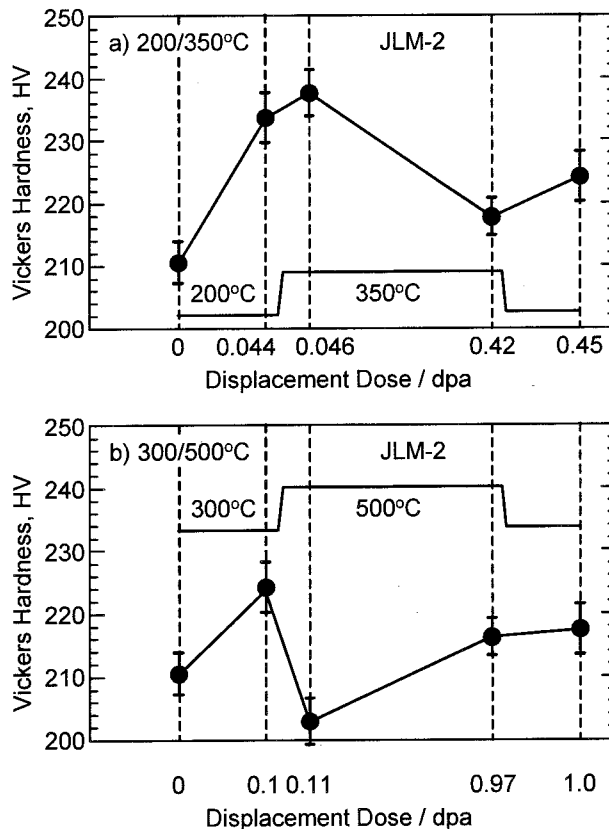


図5. 3. 2 JMTR97M-33U照射したJLM-2鋼のビッカース硬さ変化.
a) 200/350°C照射, b) 300/500°C照射.

への降温によっても、その傾向は変わらなかった。

JMTR97M-33U 照射の参照試験として行った 98M-5U 一定温度 (350, 500°C) 照射した JLM-2 鋼における HV 変化を図 5.3.3 に示す。350°C 照射においては、0.01dpa の照射により HV が約 16 上昇したが、その後 0.65dpa の照射まで大きな変化を示さなかった。また、500°C 照射においては、0.015~0.13dpa の間で照射軟化が進行していったが、その後の 0.4dpa 以上では、ほぼ非照射材に近い値を示した。

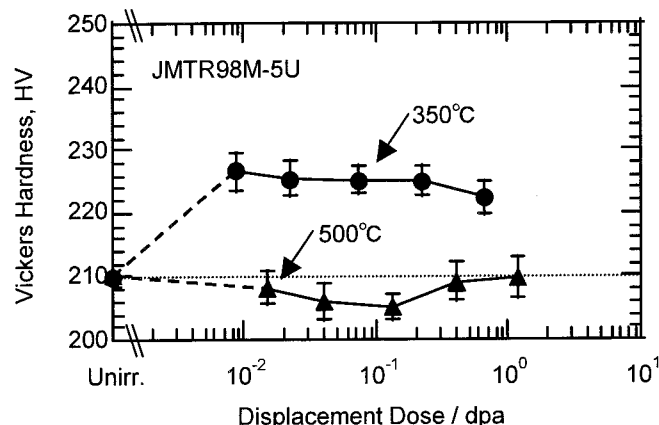


図5.3.3 JMTR98M-5U照射したJLM-2鋼のビッカース硬さの照射量依存性。350, 500°C照射の結果を示す。

図 5.3.4 に JMTR96M-21U において 200/400°C 交番照射した低放射化マルテンサイト鋼の引張試験によって得られた降伏応力の変化を示す。何れの鋼種においても、照射による顕著な変化は観察されなかった。

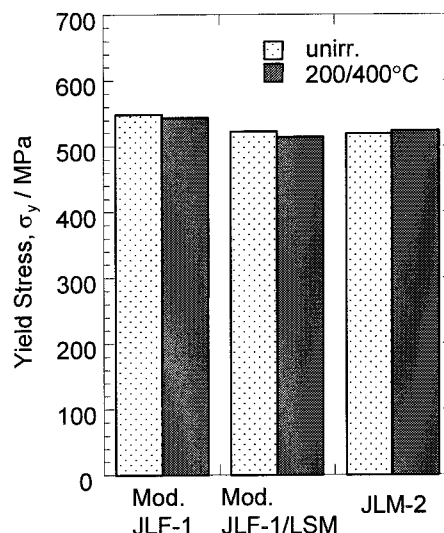


図5.3.4 JMTR94M-21Uにおいて、200/400°C交番照射した低放射化マルテンサイト鋼の降伏応力変化。

5.3.2 陽電子寿命測定結果

JMTR94M-13U 照射した Mod. JLF-1/LSM の陽電子寿命測定結果を、図 5.3.5 に示す。図 5.3.5(a) は 220/420°C 照射の結果である。220°C での照射により、約 390ps の寿命を持つ成分が生じた。420°C 昇温直後には、長寿命成分は一旦消失し、そのまま照射を続けると、約 240ps の長寿命成分が出現した。図 5.3.5(b) は 340/530°C 照射の結果である。

340°C での照射により、約 290ps の寿命を持つ成分が生じた。530°C 昇温直後には長寿命成分は消失した。

図 5.3.6 には、JMTR97M-33U 照射した JLM-2 鋼の陽電子寿命測定結果を示す。図 5.3.6(a) は 200/350°C 照射の結果である。200°C での照射により、約 340ps の寿命を持つ成分が生じた。350°C への昇温直後には、220/420°C 照射と同様に長寿命成分は一旦消失し、そのまま 350°C での照射を続けると、約 280ps の長寿命成分が出現した。その後の 200°C への降温によって、長寿命成分は増大し、約 400ps の値を示した。図 5.3.6(b) は 300/500°C 照射の結果である。300°C での照射により、約 350ps の寿命を持つ成分が生じた。500°C への昇温直

後には長寿命成分は消失しないものの約 250ps まで減少し、そのまま 500℃での照射を続けると、約 340ps まで長寿命成分の寿命値は増大した。その後の 300℃への降温によって、長寿命成分の寿命値は若干増大して約 360ps を示した。

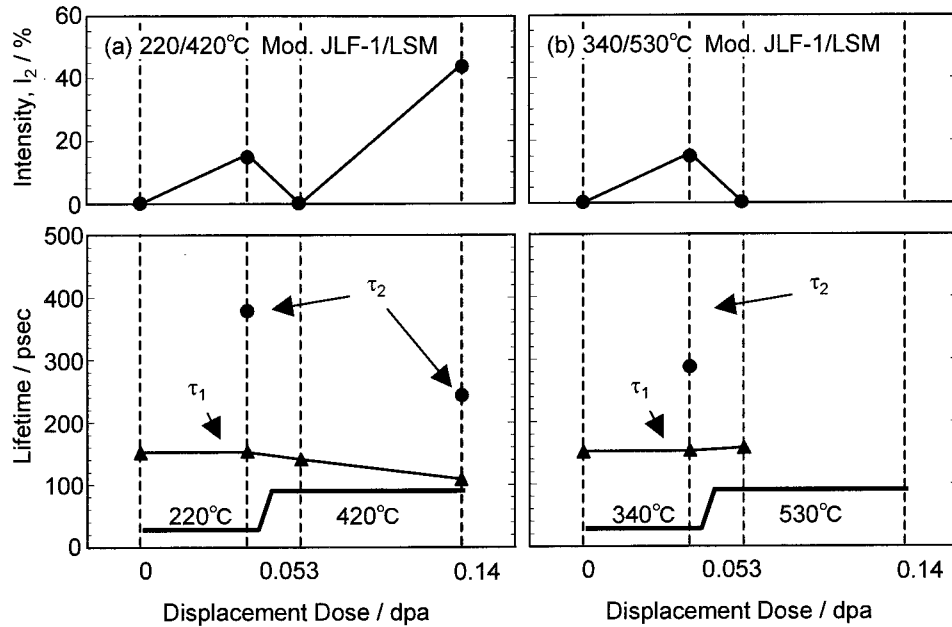


図5. 3. 5 JMTR94M-13U照射したMod. JLF-1/LSM鋼の陽電子寿命測定結果。
(a) 220/420℃照射, (b) 340/530℃照射。

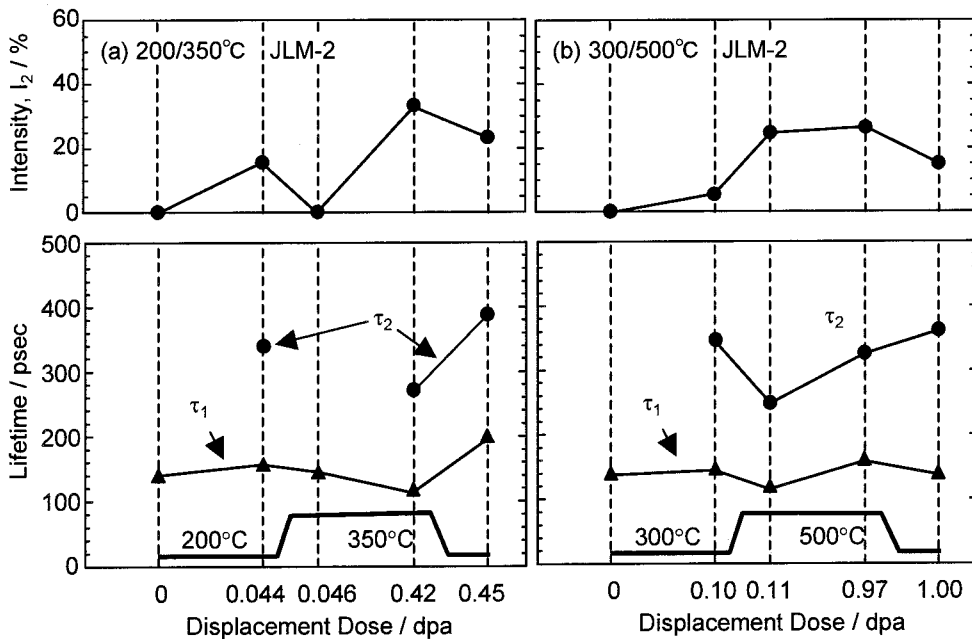


図5. 3. 6 JMTR97M-33U照射したJLM-2鋼の陽電子寿命測定結果。
(a) 200/350℃照射, (b) 300/500℃照射。

図 5.3.7 に JMTR98M-5U による 300℃, 500℃一定温度照射における陽電子寿命の照射量依存性を示す。350℃照射においては、平均寿命が照射量の増加と共に増大していることから、空孔型欠陥の増加が考えられる。しかし、2 成分解析の結果は単純ではなく、0.071dpa までは、長寿命成分の寿命値の増大と強度の低下が見られたが、その後は約 250ps 程度で変化しなかった。500℃照射においては、0.13dpa までは約 200ps の寿命を持つ長寿命成分が存在していたが、その後 0.4dpa 以上では約 300ps まで増大した。

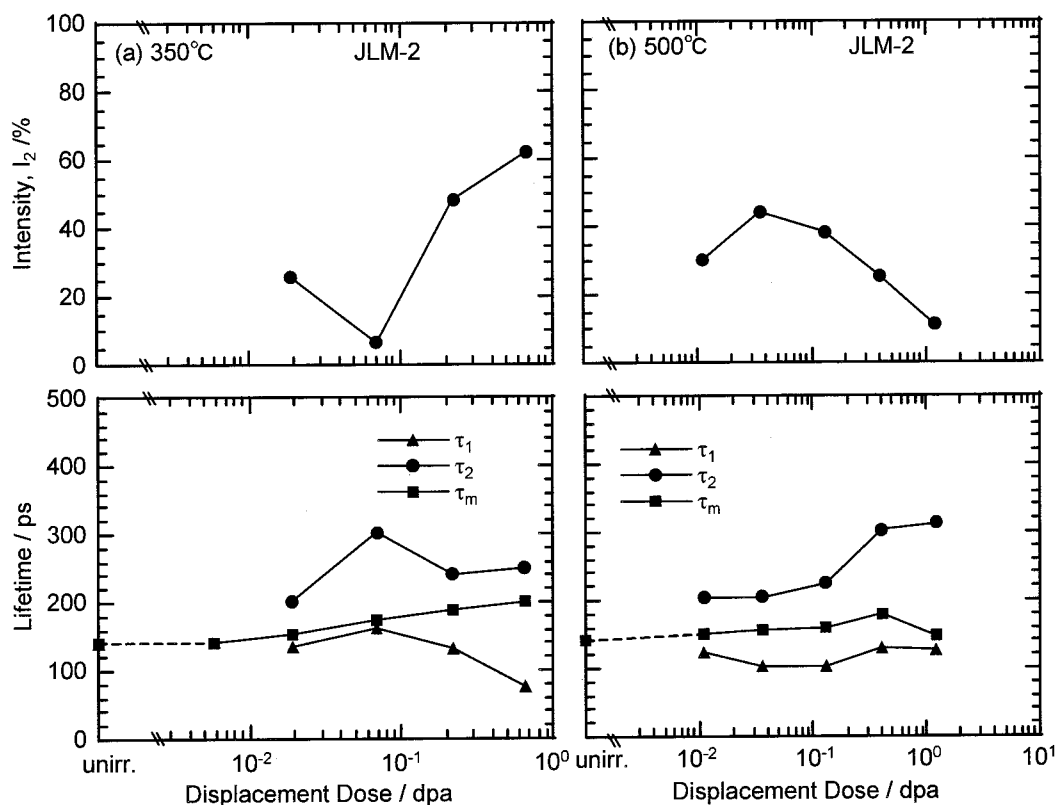


図5.3.7 JMTR98M-5U照射したJLM-2鋼における陽電子寿命の照射量依存性.
(a) 350℃照射, (b) 500℃照射.

5.4 考察

5.4.1 照射硬化に及ぼす温度変動照射の影響

照射中に照射温度を低温から高温へ上昇させた照射を行った低放射化マルテンサイト鋼の機械的特性変化を調べる上で、220/420℃照射と 200/350℃照射の結果は特徴的である。

図 5.3.1(a)と図 5.3.2(a)で示したように、照射硬化が顕著に生じる温度域である 200℃も

しくは 220℃での照射後に、照射温度を上昇させることによって生じる降伏応力変化の高温側温度に対する依存性は、図 3.3.13 に示した照射硬化の等時焼鈍回復挙動から類推することができる。照射後焼鈍においては 400℃で照射硬化の顕著な回復が見られ、350℃での回復量は小さかった。すなわち、温度変動照射下においても、照射硬化に寄与している因子に対する同様の熱的な現象が生じているために、200℃から 350℃への昇温直後における照射硬化の減少が生じなかったと考えることができる。また、第 3 章において照射硬化の主要因子は V-cluster ではなく I-cluster である可能性を指摘した。温度変動照射下における照射硬化への V-cluster の寄与について検討すると、図 5.3.5(a)と図 5.3.6(a)に示した陽電子寿命測定結果により、220/420℃照射において昇温直後には照射硬化、長寿命成分ともに消滅しているが、200/350℃照射においては昇温直後には長寿命成分が消滅しているにも関わらず、照射硬化は消滅せず変化を示していない。これらの結果は、低放射化マルテンサイト鋼における V-cluster が照射硬化にほとんど寄与していないことを明確に示している。しかし、昇温による照射硬化の消失挙動は、低温側での照射によって形成した V-cluster の熱的安定性に間接的に支配されており、昇温時の V-cluster の分解によって生じた過剰空孔の流入により、硬化に寄与する I-cluster が収縮・消滅する機構で説明される。

しかし、低放射化マルテンサイト鋼中の I-cluster が非常に微細であるため、I-cluster の収縮・消滅を TEM によって確認することは不可能だった。しかし、本研究と同等の照射条件において、純金属やモデル合金における温度変動照射による損傷組織の TEM 観察結果が報告されている。Horiki らによる本研究と同じ照射である 94M-13U による 220/420℃照射や 95M-5U による 260/420℃照射を行った純鉄の TEM 観察結果によると、低温側の照射により形成した格子間原子型転位ループ (I-loop) は昇温によって縮小している [163, 164]。また、Nita らはバナジウム合金に対する温度変動照射試験を JMTR やイオン加速器を用いて行っており、同様に、低温側で形成した I-loop の昇温による縮小を報告している [165, 166]。これらの結果は、本研究によって提案された高温側への温度変動照射による照射硬化の消失機構を支持している。

低温側の照射温度がより高い図 5.3.1(b)や図 5.3.2(b)のような場合についても、上述の議論と同様なことが言える。300/500℃照射においては昇温によって照射硬化から照射軟化へと転じているのは、I-loop の消滅による硬化の回復に加えてマルテンサイト組織の回復が生じているためと考えられる。ただし、このような比較的高温域での V-cluster 挙動は図 5.3.7 に示した一定温度照射下においても単純ではない。このことに関する考察は次節で行う。

ここまでは、低温から高温への昇温照射挙動について議論してきたが、その後の低温への降温照射によっても興味深い結果が得られている。図 5.3.2(a)で示したように、350℃での照射後に 200℃へ照射温度を下げると、照射硬化量は上昇した。この原因としては、一旦消滅した I-cluster が低温照射により再び形成された可能性が挙げられる。また、この時

の陽電子寿命測定における長寿命成分は、図 5.3.6(a)で示したように寿命値は増加し、強度は低下している。更に、この時の τ_1 が約 110ps から約 200ps にまで増加していることから、何らかの中間寿命成分が形成されたことが考えられる。

また、200/400℃交番照射において照射硬化が観察されなかったのは、低温側の照射で生じた欠陥クラスターが、高温側への昇温によって消滅してしまうため、繰り返しの効果が見られなかったためであると考えられる。

5.4.2 V-cluster 形成挙動に及ぼす照射温度の影響

前節の議論において、温度変動照射下での照射硬化挙動が V-cluster の熱的安定性に大きく影響される可能性を指摘した。そこで、本節では V-cluster の形成挙動に及ぼす照射温度の影響について考察する。既に第 3 章で述べた 220℃照射材における陽電子寿命の照射量依存性は 0.15dpa までの範囲で得られている。また、80℃照射材についても 0.11dpa 照射材の結果が得られている。これらの結果と、本章における 350℃、500℃照射などの陽電子寿命結果から求めた、0.1dpa 程度の照射量における V-cluster (マイクロボイド) の半径と密度の照射温度依存性を図 5.4.1 に示す。

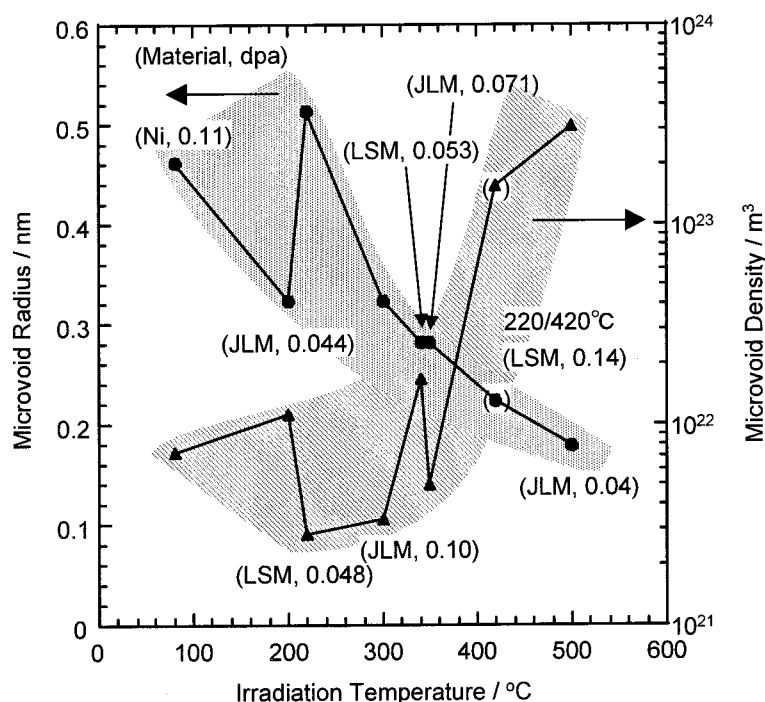


図5.4.1 陽電子寿命測定結果から求めたマイクロボイド半径と密度の照射温度依存性。NiはMod. JLF-1/LSM/Niを、LSMはMod. JLF-1/LSMを、JLMはJLM-2をそれぞれ示す。

この図から、照射温度の上昇と共に、マイクロボイドのサイズは減少し、密度は上昇して

いるように見られる。しかし、点欠陥クラスターの形成挙動の温度依存性は、低温域では核形成が優勢であり、高温域では成長過程が優勢であるため、高温ほどサイズは大きくなり、密度は減少するのが一般的であるため、本研究の結果は通常考えられる点欠陥クラスターと逆の挙動を示しているように思われる。このような相違は、低放射化マルテンサイト鋼の点欠陥回復挙動における stage V が 300～350℃に存在し、これ以上の照射温度では空孔型欠陥が熱的に安定に存在できないためである。よってこれらの結果から言えることは、0.1dpa 程度の照射量によるマイクロボイドの形成挙動に及ぼす照射温度の影響は 80～350℃の範囲において若干見られ、それ以上の温度ではマイクロボイドの形成そのものが見られないということである。このことは、マイクロボイドの熱的安定性が、照射硬化の温度依存性に対しても、間接的ではあるが顕著な影響を与えていることと矛盾しない。

このように、一定温度照射下での照射硬化挙動は言うまでも無く、温度変動照射による微細組織発達や機械的特性変化の最終的な状況を決定する上でもマイクロボイドの熱的安定性が大きな役割を果たしていると考えられる。

5.5 結論

低放射化マルテンサイト鋼の微細組織や照射硬化に及ぼす温度変動照射の影響を調べた。以下にその成果をまとめる。

- 1) 照射温度の上昇による照射硬化の消失挙動は、高温域での照射温度に依存する。
- 2) 照射温度の上昇による照射硬化の消失は、低温域での照射によって形成された V-cluster が熱的に不安定になり、分解して放出された過剰空孔が I-cluster に流入し、主要な硬化因子である I-cluster を収縮・消滅させることによって生じるというモデルを提案した。
- 3) 照射硬化が顕著に生じる照射温度域では、マイクロボイドの形成挙動、熱的安定性が照射硬化の照射温度依存性に大きな影響を与えていると考えられる。

第6章 低放射化マルテンサイト鋼の相安定性に及ぼす時効および

中性子重照射効果

6.1 緒言

これまでの章では、主に自己格子間原子や空孔とそれらの集合体の挙動に着目し、照射効果を議論してきた。しかし、照射温度が比較的高く、また照射量が大きくなると、低放射化マルテンサイト鋼の組織の安定性が、材料挙動に大きな影響を及ぼすことが予測される[167]。

Fe-C 系合金に更なる合金元素を添加すると、 Fe_3C （セメンタイト）以外の炭化物が出現する。これらの合金炭化物には各種のものがあり、鋼の熱処理条件によって種々の組成的、結晶的、形態的な変化を示し、材料特性に大きな影響を与える（詳細は Appendix A に記述）。これらの析出物を形成させるための、最適な合金元素の種類と量の選択および最適な熱処理は、高温強度や靱性の向上に極めて有効である。一般的に、焼戻し後の低放射化マルテンサイト鋼中には、 M_{23}C_6 や MC タイプの炭化物が粒内やラス境界上などに析出する。7~9Cr-2WVTa を主成分とする低放射化マルテンサイト鋼における炭化物として、 M_{23}C_6 や V_4C_3 の他に、TaC が報告されている。Ta は従来鋼における析出強化元素である Nb を低放射化の概念から置換したものであるが、その際の最適添加量や高温強度および靱性に対する効果については不明な点が多い。Ta の微量添加は破断強度や靱性を増加させるという報告があるが[168, 169]、過剰な Ta の添加は溶接金属において靱性を低下させるという報告もある[170]。

また、Mo や W を含むフェライト系耐熱鋼を長時間高温で使用すると、Laves 相の析出により靱性が著しく低下することは良く知られている[169, 171]。7~9Cr-2W 系低放射化鋼においても、時効によって Laves 相が形成し、DBTT が上昇することが報告されている[169, 172]。しかし、照射下において Laves 相の析出が促進されるか否かは明確ではなく、意見が分かれている[173-177]。

本章では、数 10dpa に及ぶ FFTF/MOTA 照射した低放射化マルテンサイト鋼と、その照射の熱履歴を模擬した時効材における炭化物や Laves 相の析出挙動の比較をすることによって、相安定性に及ぼす中性子重照射の影響を明らかにし、高温重照射下における靱性劣化の改善に寄与する合金設計に関する基礎的知見を得ることを目的とした。

6.2 実験方法

本章での実験に用いた試料は JLM-1 鋼である。表 2.1.1 で示したように、本鋼は 9Cr-2W を基本組成とした低放射化マルテンサイト鋼であり、Ta, V, Ti といった炭化物形成元素の他に、微量の B が添加されている。中性子照射は FFTF/MOTA のサイクル 2A で行われた。照射期間は 299.7EFPD (2.6×10^4 ks) であり、照射量は 26~70dpa である。また、この照射の熱履歴を模擬した時効材も作製した。時効温度は 375, 425, 460, 520, 600℃である。照射後試験として、TEM による微細組織観察、レプリカ試料を用いた EDS 分析を行った。これらの照射後試験の詳細については第 2 章に述べた。

6.3 実験結果

6.3.1 時効材の観察・分析結果

図 6.2.1 に、供試材 (as-received) および、375℃、460℃、600℃時効材についての薄膜試料の明視野像 (Bright Image) と、レプリカ試料に対する ASID (A Scanning Image Observation Device) を用いた走査像 (Replica) を示す。供試材において見られた高密度の析出物や転位およびラス構造は、375℃、460℃の時効後には変化が見られず、JLM-1 鋼におけるマルテンサイト組織の高い相安定性を示していた。しかし、時効温度が 600℃に達すると、明確な組織変化が見られ、ラス構造および転位組織の回復と粗大な析出物の形成が確認された。

600℃時効による析出物の形態変化を調べるために、ASID と EDS (Energy Dispersive X-ray Spectroscopy) を用いた元素分布測定を行った。図 6.2.2 に (a) 供試材と (b) 600℃時効材の薄膜試料に対する測定結果を示す。供試材における粒界やラス境界上の析出物は、主に Cr と W および C を含んでおり、 $M_{23}C_6$ 型の炭化物であった。一方、600℃時効材における粒界やラス境界上の塊状析出物は Cr と W を含んでおり、C の濃縮は見られなかった。このような析出物からの EDS スペクトルと定量分析結果によると、組成は図 6.2.3 に示す通りであり、回折像から Laves 相 (Fe_2W) であることが確認された。また、(Ti, Ta)-rich な球状析出物がいずれの試料においても観察され、約 250nm 程度のまばらなものと、100nm 以下の均一に分散したものが存在した。これらの (Ti, Ta)-rich な球状析出物の EDS スペクトルと定量分析結果を図 6.2.4 に示す。

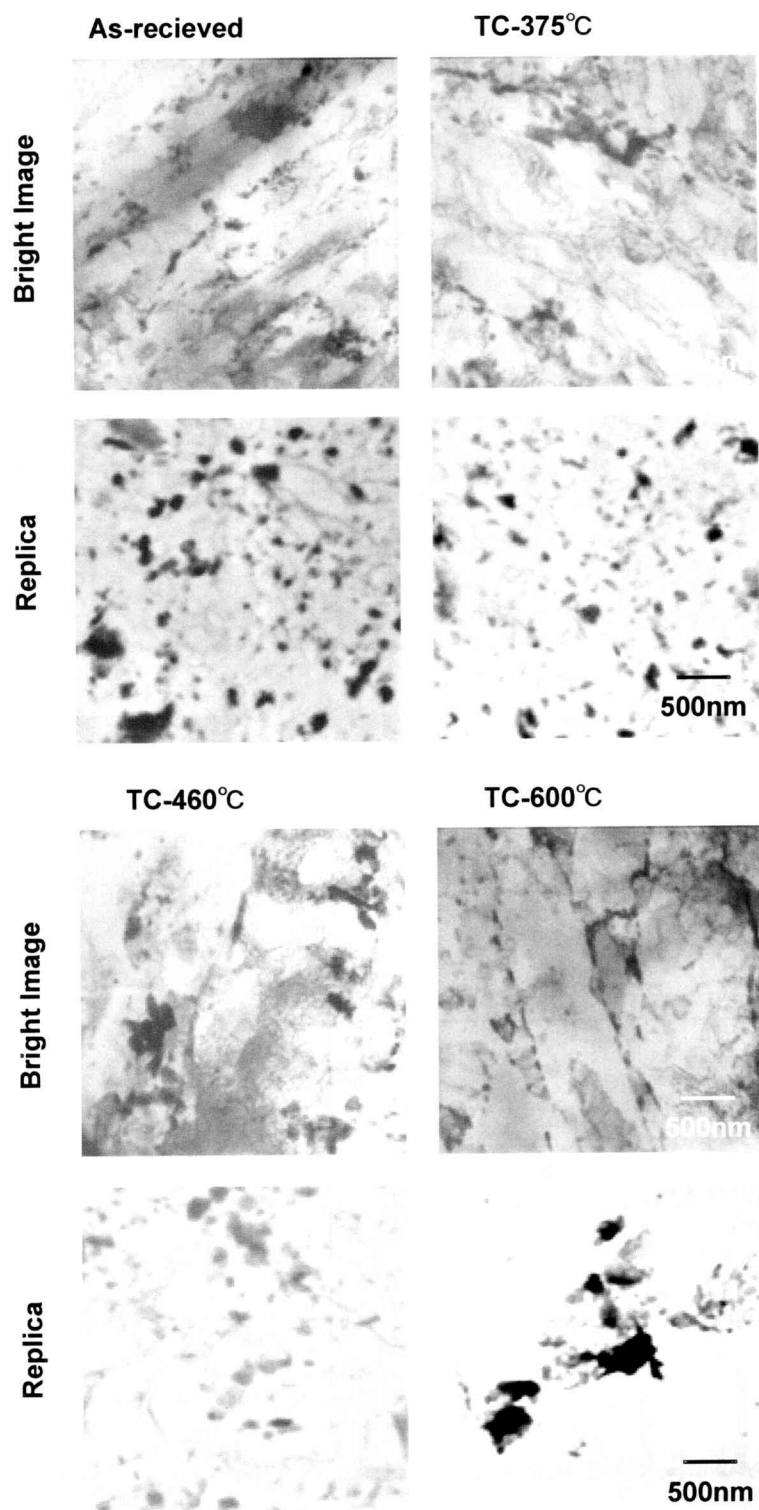


図6.2.1 供試材と時効材についての薄膜試料の明視野像と、レプリカ試料に対するASIDによる走査像。

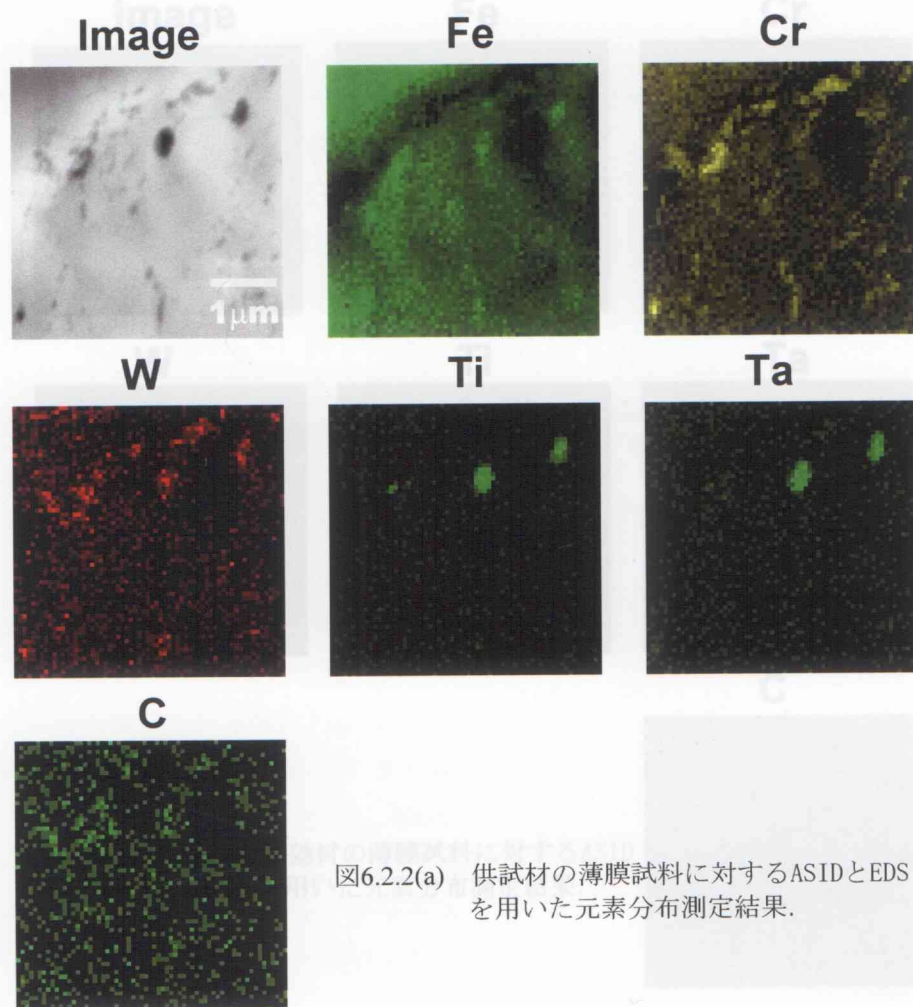


図6.2.2(a) 供試材の薄膜試料に対するASIDとEDSを用いた元素分布測定結果.

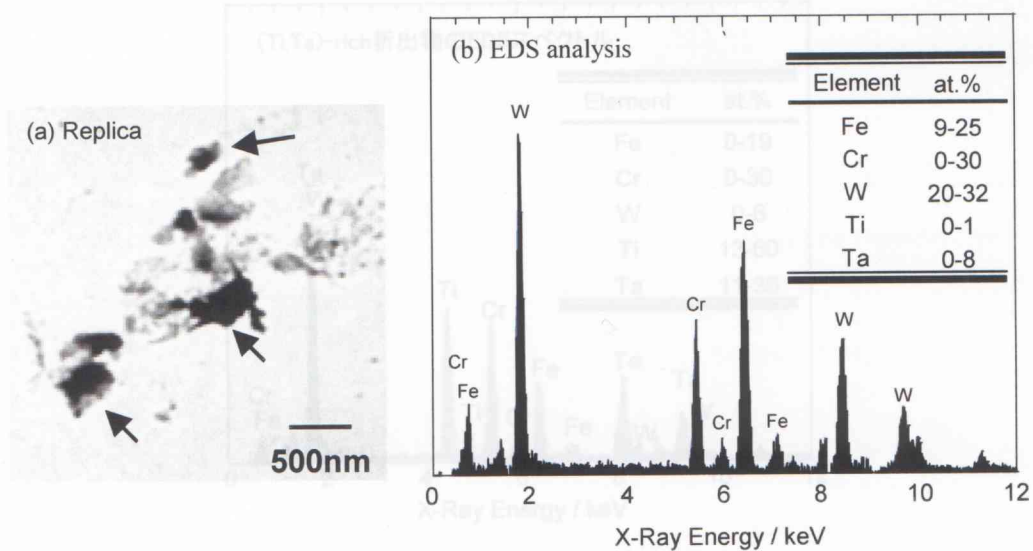


図6.2.3 (a) 600°C時効材のレプリカ試料と, (b) Laves相のEDSスペクトルと定量分析結果.

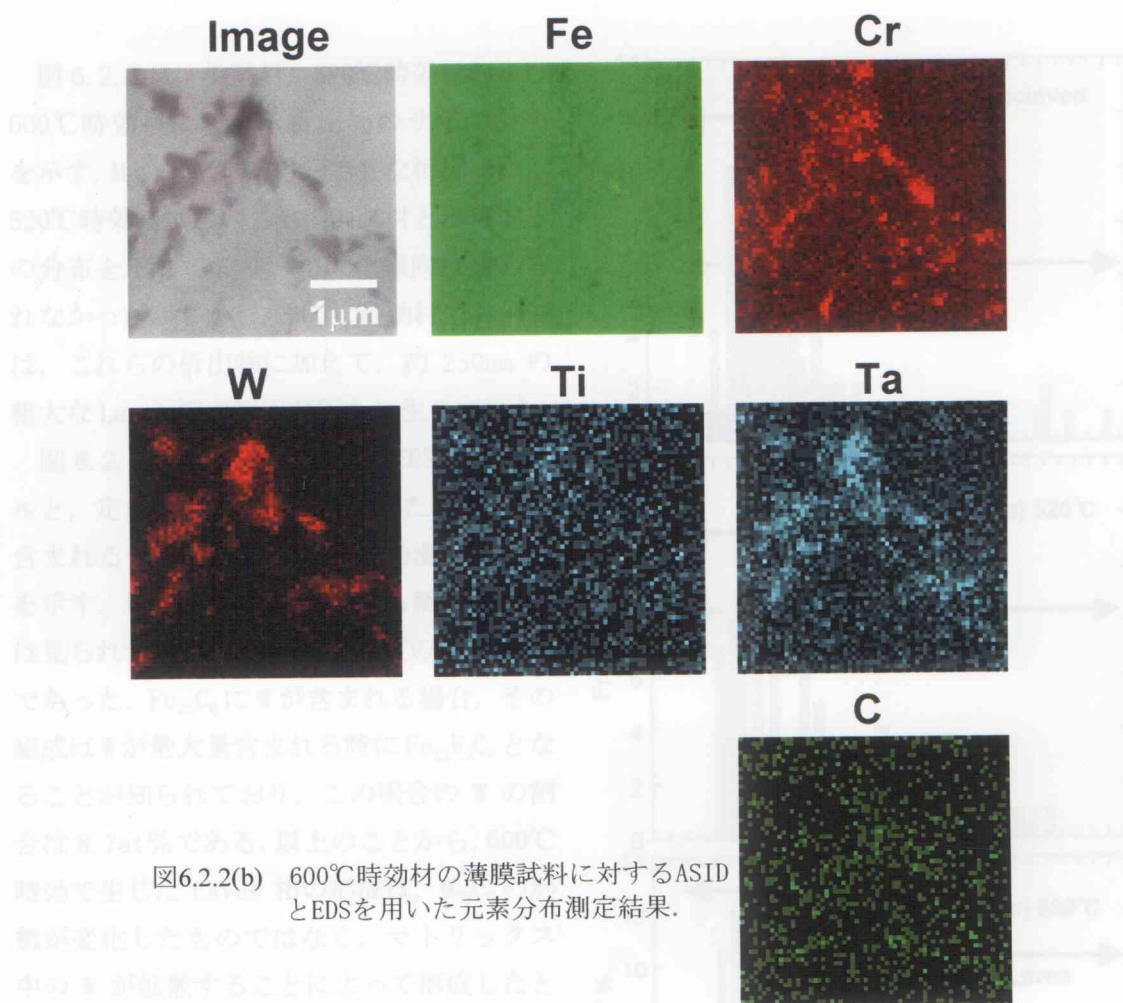


図6.2.2(b) 600℃時効材の薄膜試料に対するASIDとEDSを用いた元素分布測定結果.

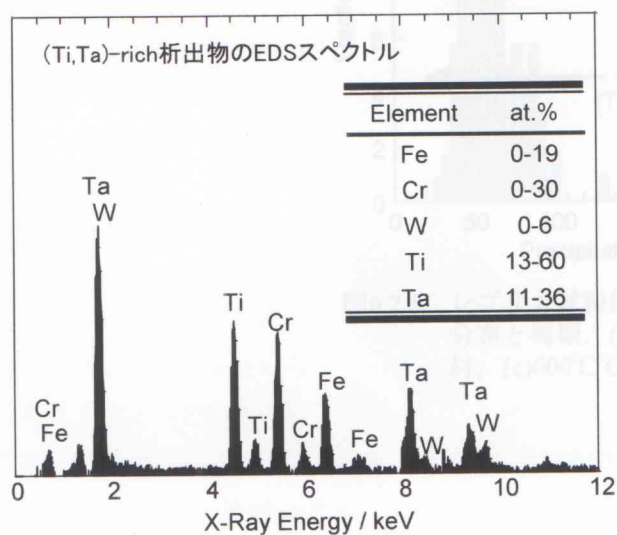


図6.2.4 (Ti, Ta)-rich析出物のEDSスペクトルと定量分析結果.

図 6.2.5 に、供試材、520℃時効材および 600℃時効材における析出物のサイズ分布を示す。 $M_{23}C_6$ と (Ti, Ta)-rich な析出物は、520℃時効後においても、供試材とほぼ同一の分布を示しており、粗大化傾向は認められなかった。しかし、600℃時効材においては、これらの析出物に加えて、約 250nm の粗大な Laves 相の析出が新たに生じていた。

図 6.2.6 に $M_{23}C_6$ の代表的な EDS スペクトルと、定量分析によって評価した $M_{23}C_6$ 中に含まれる合金元素の割合の時効温度依存性を示す。時効温度の上昇による組成の変化は見られず、W の割合はほぼ一定の 4~7at% であった。 $Fe_{23}C_6$ に W が含まれる場合、その組成は W が最大量含まれる時に $Fe_{21}W_2C_6$ となることが知られており、この場合の W の割合は 8.7at% である。以上のことから、600℃時効で生じた Laves 相の形成は、 $M_{23}C_6$ の形態が変化したものではなく、マトリックス中の W が拡散することによって形成したと考えられる。

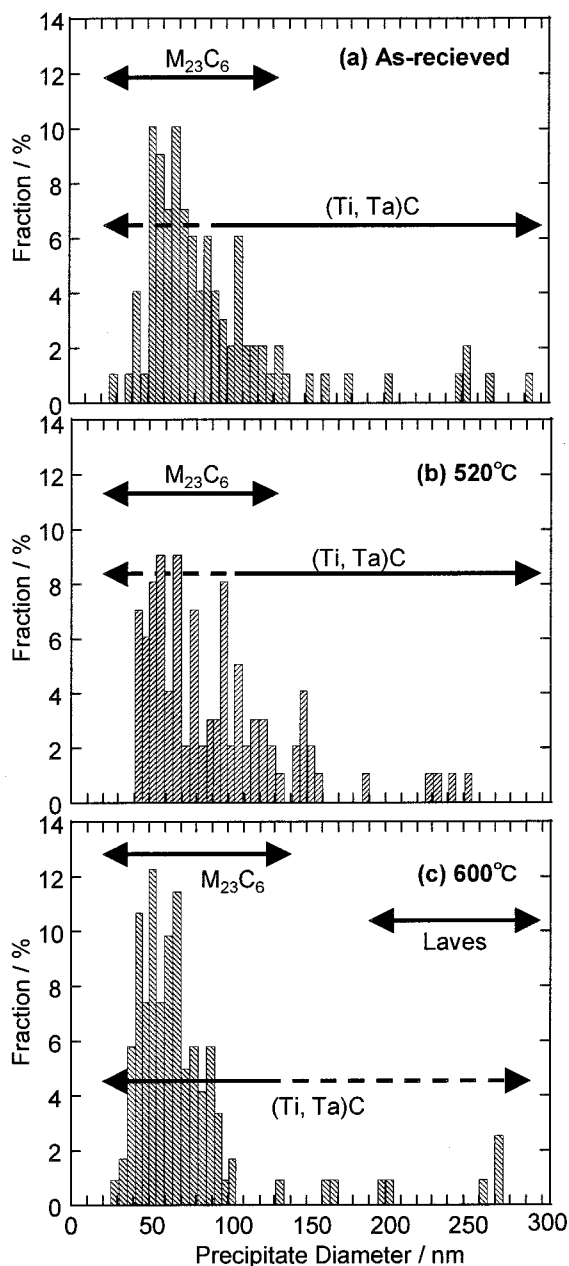


図6.2.5 レプリカ試料における析出物のサイズ分布と種類。(a)供試材、(b)520℃時効材、(c)600℃時効材。

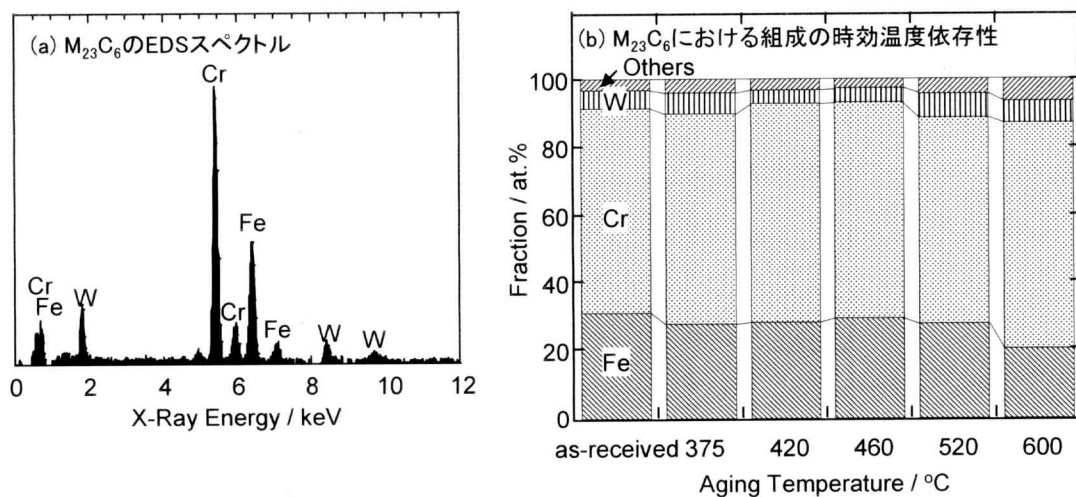
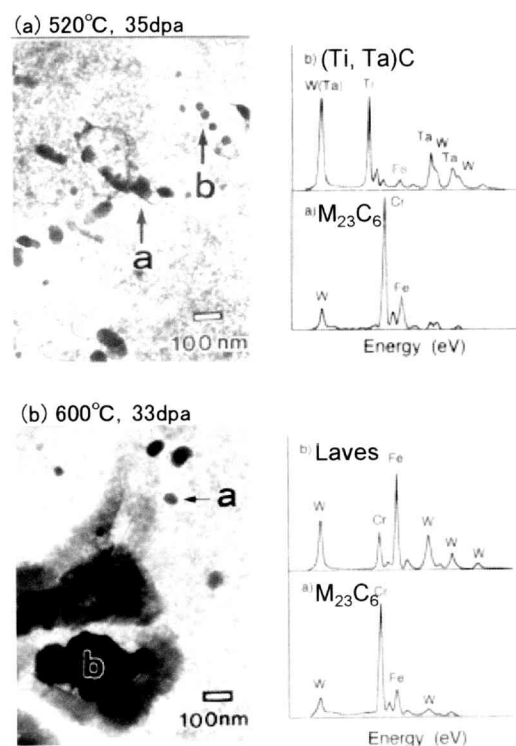


図6.2.6 (a) $M_{23}C_6$ のEDSスペクトルと、(b) $M_{23}C_6$ における組成の時効温度依存性

6.3.2 照射材の観察・分析結果

FFTF/MOTA 照射した JLM-1 鋼のレプリカ試料の TEM 観察結果と、EDS 分析を行った結果を図 6.2.6 に示す。520°C、35dpa 照射材では、同一温度での時効材と同様に Laves 相の形成は確認されず、 $M_{23}C_6$ と (Ti, Ta)-rich な球状析出物のみが見られた。また、600°C 照射材では、時効材と同様に粗大な Laves 相が観察された。



6.4 考察

6.4.1 Laves 相形成に及ぼす照射の影響

本研究で得られた時効材と照射材における Laves 相析出に関する結果を、Tamura らが熱時効を施した F82H 鋼について求めた

Laves 相と $M_{23}C_6$ の TTP 線図[169]上にプロットしたものが図 6.4.1 である。本研究の結果は概ね F82H 鋼の場合と一致しており、照射によって Laves 相の形成が促進されていないことが分かる。以下にその原因を考察する。

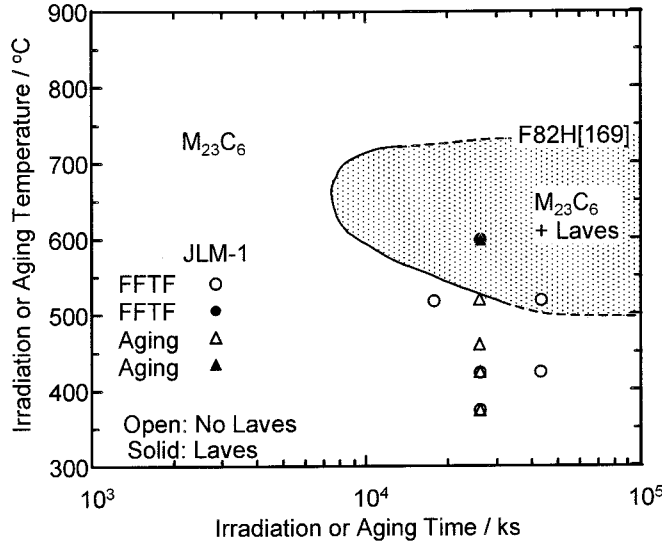


図6.4.1 F82H鋼におけるLaves相と $M_{23}C_6$ に関するTTP線図と[169]，本研究によって得られたJLM-1の時効材と照射材における結果．

6.4.1.1 照射下におけるFe中のWの拡散係数

Laves相の形成は，マトリックス中のWの拡散によって生じると考えられるため，ここでは，Laves相の成長をWの体拡散によって表してみる．Fe中のWの熱的拡散係数 D_W^h は，

$$D_W^h = D_W^0 \exp(-E_W^D / RT) \quad (6-4-1)$$

と表される．Kieszniowskiは測定温度範囲700～900℃において， $D_W^0 = 69 \text{ cm}^2/\text{s}$ ， $E_W^D = 265.9 \text{ kJ/mol}$ を与えている[178, 179]．また，Fe中においてオーバーサイズ原子であるW原子は空孔機構によって移動すると考えられるため，空孔濃度を評価する必要がある．本研究のような重照射下においては，空孔濃度は定常状態に達していると考えられ，照射下定常空孔濃度 C_V は，

$$C_V = \eta G_{dpa} / D_V S_V^T \quad (6-4-2)$$

と与えられる．ここで， η ：カスケード効率， G_{dpa} ：弾き出し損傷速度(dpa/s)， D_V ：自由空孔の拡散係数， S_V^T ：全シンク強度である．照射によって促進されたWの拡散係数（照射促進拡散係数）は，

$$D_W^{rad} = D_W^{th} (C_V + C_V^e) / C_V^e \quad (6-4-3)$$

で表され、 C_V^e ：熱的平衡空孔濃度である。Laves 相は塊状に析出するが、単純化のためにその形状は球状と仮定し、カスケードによる動的再固溶を考慮せずに成長速度を求める。マトリックス中の W 濃度を C_W^{matrix} ，Laves 相中の W 濃度を C_W^{Laves} ，Laves 相の半径を r ，体積を V とすると、Laves 相体積の成長速度は、

$$dV / dt = 3D_W C_W^{matrix} r / C_W^{Laves} \quad (6-4-4)$$

となる。ここで、 D_W ：Fe 中の W の拡散係数である。全 W 濃度を C_W^{total} ，Laves 相数密度を N_{Laves} とすると、

$$C_W^{total} = 4/3 \pi r^3 N_{Laves} C_W^{Laves} + C_W^{matrix} \quad (6-4-5)$$

と与えられる。ここで、 $dV / dt = 4\pi r^2 dr / dt$ であるので、(6-4-4, 5) 式から、

$$dr / dt = D_W \left[(3/4) (C_W^{total} / \pi r C_W^{Laves}) - r^2 N_{Laves} \right] \quad (6-4-6)$$

と Laves 相の成長速度が求まる。上式からわかるように、Laves 相の成長速度は W の拡散係数に比例する。よって (6-4-3) 式から、照射下での Laves 相成長速度は、同一温度における非照射下での成長速度の $D_W^{rad} / D_W^{th} = 1 + C_V / C_V^e$ 倍になる。

表6.4.1 照射下におけるFe中のWの拡散係数を求めるために用いたパラメーター

Diffusivity pre-exponential of W	$D_W^0 (m^2/s)$	6.90×10^{-3}
W migration energy	$E_W^D (eV)$	2.76
Vacancy formation energy	$E_V^f (eV)$	1.55
Diffusivity pre-exponential of vacancy	$D_V^0 (m^2/s)$	5.00×10^{-5}
Vacancy migration energy	$E_V^m (eV)$	1.25
Boltzman's factor	$k (eV/K)$	8.62×10^{-5}
Cascade efficiency	η	0.1
Displacement rate	$G_{dpa} (dpa/s)$	1.51×10^{-6}
Total sink efficiency for vacancy	$S_V^T (m^{-2})$	$1.00 \times 10^{18}, 1.00 \times 10^{16},$ 1.00×10^{14}

表 6.4.1 に示したパラメーターをもとに、 D_W^{rad} と D_W^{th} の温度依存性を求めた結果を図 6.4.2 に示す。シンク強度 S_V^T が高いときは、広い温度範囲に渡って D_W^{rad} と D_W^{th} の間に違いは無い。図 6.4.1 で示したように、非照射下での熱時効による Laves 相形成の最低温度が

約 500℃であったことも考慮すると、Laves 相の形成に対する照射の影響が見られなかったのは、W の移動度が小さく、低放射化マルテンサイト鋼のシンク強度が高いためであると考えられる。しかし、図 1.4.4 に示したように、照射温度が約 420℃を越えると、重照射下で照射軟化の生じることが Kimura らによって報告されており[40]、照射軟化が生じる原因として転位やラス構造の回復が指摘されている。従って、照射軟化が進展する状況下ではシンク強度が低下するために、 $S_V^T = 1.0 \times 10^{14}$ の場合に示されるように、W の拡散、すなわち Laves 相の形成が促進され、靱性低下を助長する可能性がある。

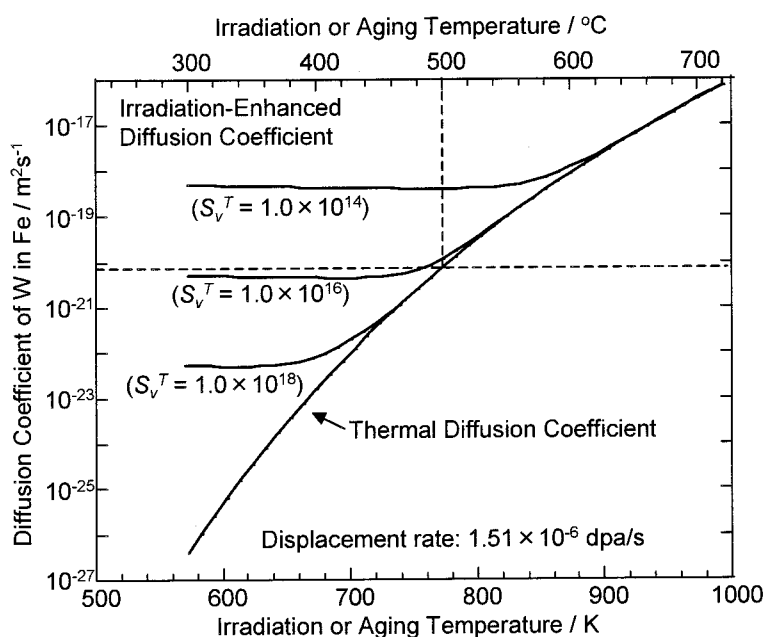


図6.4.2 Wの拡散係数に及ぼす照射の影響。

6.4.1.2 Fe 中 W の拡散に及ぼす損傷速度の影響

重照射下における材料挙動の研究は、イオン加速器を用いて行われることが多いため、ラーベス相形成に及ぼす損傷速度の影響について考察する。図 6.4.3 に照射温度 600℃における W の拡散係数と、10dpa, 100dpa までの照射時における W の拡散距離の損傷速度依存性を示す。図中、実線は拡散係数、点線は拡散距離を表している。JMTR や FFTF といった原子炉を用いた中性子照射における損傷速度は、W の拡散係数に影響を与えないが、イオン加速器の損傷速度にまで上昇すると拡散係数は上昇するが、照射時間が短くなるため、拡散距離は極めて短くなる。よって、照射下での Laves 相の形成挙動を調べるためにイオン加速器を用いた照射試験を行う時には、中性子照射と同程度の照射量を与えても Laves 相の形成に至らない可能性があり、相安定性評価には注意を要する。

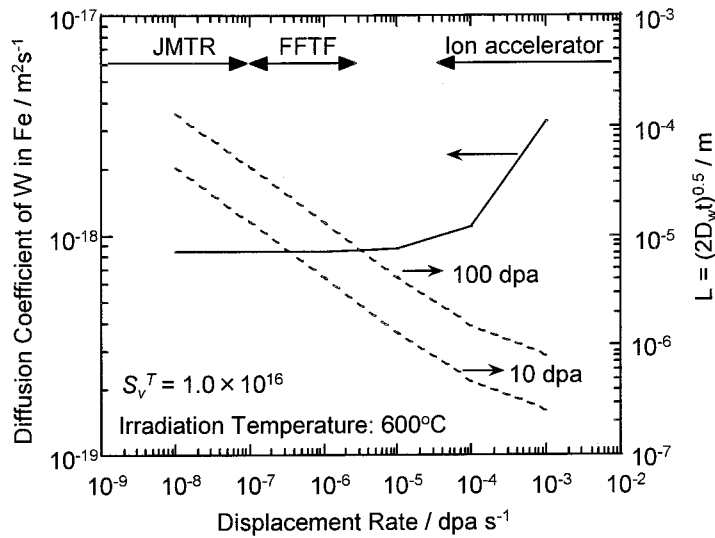
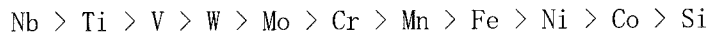


図6.4.3 Wの拡散係数に及ぼす損傷速度の影響

6.4.2 Ti, Ta 複合添加の影響

0.021wt%のTiと、0.080wt%のTaを含むJLM-1において、(Ti,Ta)-richな球状析出物が供試材、時効材、照射材の全てに見られた。そこで、本節ではTiとTaの効果について考察する。

Bainによって定められた炭化物の形成傾向が、



という序列になっていることからわかるように[180], Tiは炭化物を極めて形成しやすい。表A.2.1に示すように,TiはMC型の炭化物を形成する。図6.4.4にOhtaniらによるFe-Ti-C系合金のCalphad (Calculation of Phase Diagrams) 法を用いた計算状態図を示す[181]。JLM-1鋼におけるTi濃度は0.021wt%であるが、この程度のTi添加によってもオーステナイト単相領域が著しく縮小し、オーステナイト+TiC_n領域を拡大することがわかる。また、オーステナイト単相領域の縮小は、数10wtppm程度の微量のB添加によっても生じることがOhtaniらによって同様に求められている[182]。これらの結果は、TiとBを添加しているJLM-1鋼のオーステナイト領域が、両者を添加していないJLF-1鋼に比べて狭いことを示唆しており、図6.4.4に示したように、JLM-1鋼の組成と熱処理においては、溶体化処理時にTiが完全に固溶せずTiCもしくはTi(C,N)として析出していた可能性がある。JLM-1鋼の供試材において、まばらに粗大化したTi-richな析出物が観察されたのは、溶体化処理温度が低かったことを示唆している。Tiの添加はボイド・スエリングや水素脆化の抑制に効果的であることが示されている[37]。しかし、照射脆化の観点からは、JMTR照射したJLF-1鋼に比較して0.02wt%のTi添加したJLF-2鋼のDBTTが高くなるという悪影響が報告

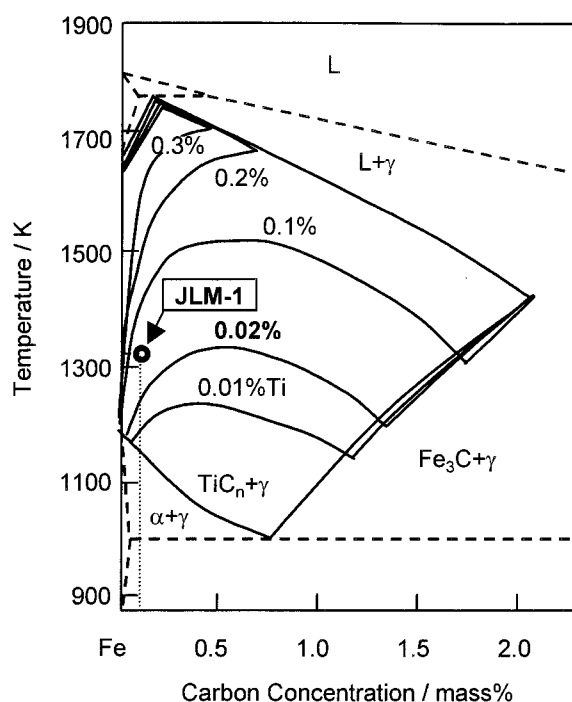


図6.4.3 Fe-C-Ti系計算状態図.

されている[183, 184]. JLF-1 鋼と JLF-2 鋼の溶体化処理温度は同一の 1050℃であり, 本研究の結果を考慮すれば, Ti 添加した JLF-2 鋼においては, TiC もしくは Ti (C, N) が粗大析出し, 靱性を低下させたことが考えられる. よって, 最適な熱処理を施せば, Ti 添加によって, 靱性を損なうことなくボイド・スエリングの抑制を行うことが可能であると考えられる.

Ta が機械的性質に及ぼす効果に関しては, Asakura らが低放射化 9Cr-2W-V-Ta 鋼における微細組織, クリープ破断強度および靱性について調べ, Ta (C, N) は 1050℃, 30min の溶体化処理でほとんど固溶し, 0.05~0.10wt% の Ta 添加はクリープ破断強度の観点では Nb 添加に比べて遜色なく, 靱性の改善には極めて効果的であること

を示した[185]. また, Tamura らは, F-82H 鋼と類似の組成をもつ低放射化 8Cr-2W フェライト鋼の組織形成における Ta の効果について, TaC によるオーステナイト粒の微細化を報告している[186]. これらの研究から, Ta 添加は結晶粒を微細化し, 高温強度や靱性の改善に有効な元素であると言える.

本研究においては, Ta が単体で炭窒化物として析出していたのではなく, 全て Ti を含む複合析出物, おそらく (Ti, Ta) (C, N) として析出していた. Ti と Ta が複合化して析出していた原因としては, 炭化物形成傾向の強い Ti が優先的に炭窒化物として析出し, その周囲に Ta が析出することが考えられる. 実際に, Tamura らは 0.005wt% という低濃度の Ti を含む 8Cr-2W 鋼において TiN の表面上に密着して TaC が析出している様子を観察している[186]. このように Ti と Ta の複合添加は, Ta の微細な分散析出を妨げ, 靱性や高温強度の向上を妨げると考えられる. よって, 両者の添加元素の特性を生かすには, より適切な熱処理条件を探索することが必要である.

6.5 結論

低放射化 9Cr-2W マルテンサイト鋼の相安定性を調べるために, 375~600℃, 2.6×10^4 ks での時効および中性子照射による組織変化を調べた. 主な成果を以下に記す.

- 1) 520℃以下, 2.6×10^4 ks の時効では, Laves 相の形成は見られずラス構造も安定であっ

たが、時効温度が 600℃に達すると塊状の Laves 相が旧オーステナイト粒界およびラス境界上に析出し、転位組織やラス構造の回復することが確認された。

- 2) 520℃以下での FFTF/MOTA 照射による Laves 相析出の促進は認められなかった。一方、600℃照射材においては、時効材同様 Laves 相の形成が確認された。
- 3) Laves 相の形成に対する照射の影響が見られなかったのは、W の拡散速度が小さく、かつ低放射化マルテンサイト鋼のシンク強度が高いことによって、照射による拡散の促進効果が小さいためであると考えられる。
- 4) 0.02wt%の Ti 添加により、(Ti, Ta) (C, N) と考えられる球状析出物の形成が見られ、照射下においても 600℃まで安定に存在した。
- 5) Ti と Ta の複合添加は、Ta の微細な分散析出を妨げ、靱性や高温強度の向上を妨げると考えられる。よって、両者の添加元素の特性を生かすには、より適切な熱処理条件を探索することが必要である。

第7章 低放射化マルテンサイト鋼の照射効果のモデル化

7.1 緒言

固体材料が、ある閾値以上のエネルギーを持った粒子の照射を受けると、原子の弾き出しを中心とする過程に起因した照射損傷が生じる。照射損傷によって形成された一次欠陥は、非平衡状態にあり、その後の拡散による集合、離散、消滅過程を経て、準安定状態もしくは安定状態に向かう。これらの素過程とそれに起因した微細組織や巨視的性質の変化を照射効果と呼び、これまでの章で示したような照射硬化やスエリングなどの現象が引き起こされる。図 7.1.1 に、これらの過程を時間スケールに対して示す[96]。実験的に観察可能な範囲は、主に拡散過程以降の現象であり、中性子照射効果に関しては、照射後の微細組織・組成変化や材料特性変化を評価することのみが実質的に可能な範囲である。しかし、14MeV 強力中性子源が存在しない今、核融合中性子環境を用いた照射試験がほぼ不可能であることを考慮すると、核融合炉材料としての材料評価を行うためには、原子炉中性子もしくはイオン照射による損傷過程と核融合中性子による損傷過程の相関則、いわゆる照射相関の確立が不可欠である。そのためには、実験的に観察可能な領域での微細組織変化や機械的性質変化などの照射効果に関するデータベースの充実が重要であることは言うまでも無いが、照射損傷過程とそれに続く一次欠陥の拡散過程による微細組織変化の機構論を構築する必要がある。

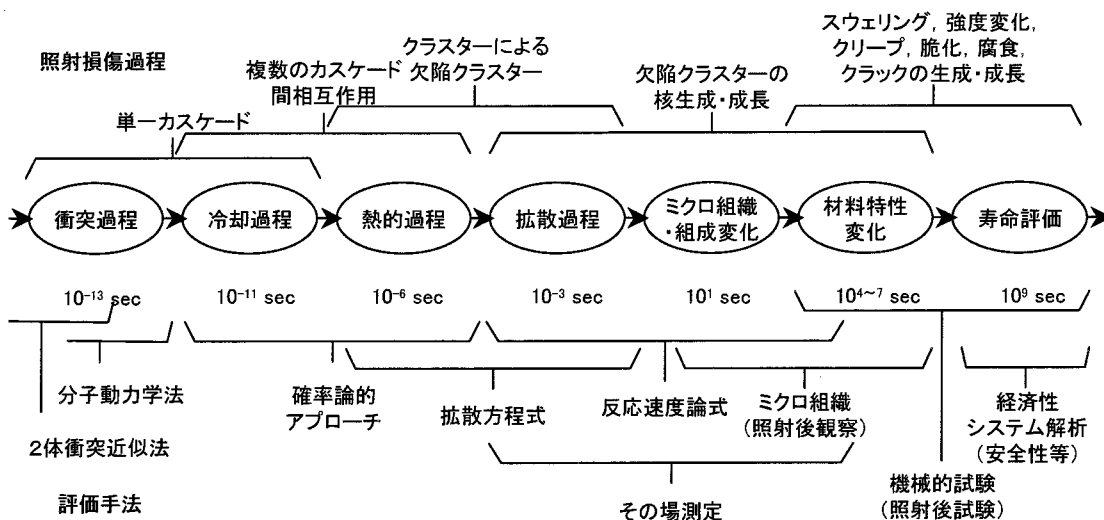


図7.1.1 照射損傷過程の時間スケールと対応する評価手法[96]。

純金属やオーステナイト鋼などにおける照射下での微細組織発達過程を、反応速度論に基づくモデルを用いて定量化する試みがなされている。反応速度論による微細組織発達過程のモデル化を歴史的に見ると、電子線照射した純金属のように単純な系から始まり、その後中性子照射条件のようにカスケード損傷や核変換 He の効果等を取り入れた詳細なモデルが提唱されてきている。しかし、これまでの章で示したように、中性子照射した低放射化マルテンサイト鋼では、降伏応力などの機械的性質に大きな変化が生じるにも関わらず、特に損傷量が 1dpa より低い場合には微細組織に変化が見出されていない。このことが、反応速度論による微細組織発達モデル化に対して最も大きな障壁となっており、フェライト系鉄鋼材料全般を見渡しても、Stoller による原子炉圧力容器鋼に対する研究に限られている[187-189]。

本研究では、これまでの実験結果に基づき、まず、低放射化マルテンサイト鋼の素温床組織発達における問題を単純化し、照射硬化の照射量依存性や温度変動照射下における I-cluster と V-cluster の役割を、反応速度論を用いて定性的に明確にすることと、今後の高度なモデルの構築に必要な基礎的知見を得ることを目的とした。

7.2 反応速度論モデル

7.2.1 カスケード損傷

照射損傷による一次欠陥形成過程は、図 7.1.1 に示したように、分子動力学 (MD; Molecular Dynamics) 法などの理論計算による研究が行われている。近年のコンピュータ性能の大幅な向上もあり、より高いエネルギーの一次弾き出し原子 (PKA; Primary Knock-on Atom) によるカスケード損傷のシミュレーションが可能になり、照射損傷過程の理解が進んでいる[140, 190]。PKA エネルギーが数 keV 程度以上と高くなると、結晶中の原子の弾き出しは連鎖的に生じるようになる。これを弾き出しカスケードと呼び、更に PKA エネルギーが高くなると、サブカスケードを形成するようになる。電子線照射におけるフレンケル対形成は、空間的に均一と考えて構わないが、カスケードによって直接的に生じる点欠陥は空間的に不均一な分布を持って生じることが指摘されている[191, 192]。カスケードの中心部には原子空孔集合体 (V-cluster) が直接形成され、その周辺部には格子間原子集合体 (I-cluster) が形成される。また、これらのクラスター形成に加え、カスケード内での相関再結合により自由点欠陥生成の効率 (カスケード効率) は低下する。

本研究におけるカスケード損傷のモデル化においては、カスケードによって生じた点欠陥の空間的分布の不均一性を考慮せずに、単位時間当りに形成する自由点欠陥やクラスターの数密度 (すなわち生成速度) が弾き出し損傷速度 (dpa/s) に比例すると仮定した。自由点欠陥の生成速度は弾き出し損傷速度にカスケード効率を乗じたものであり、カスケー

ド誘起点欠陥集合体（カスケード・クラスター）の生成速度は更にカスケード内クラスタリング効率を乗じたものである。

上記の仮定により、カスケードによって直接形成される n 個の空孔からなる V-cluster (V_n -cluster) および n 個の格子間原子からなる I-cluster (I_n -cluster) の生成速度, $G_n^{vcl,icl}$ は, NRT モデルによる損傷速度を G_{dpa} とし、次式のように与えられる。

$$G_n^{vcl,icl} = \frac{\eta G_{dpa} f_n^{vcl,icl}}{n} \quad (7-2-1)$$

ここで, η : カスケード効率, $f_n^{vcl,icl}$: V_n -cluster もしくは I_n -cluster のカスケード内クラスタリング効率である。カスケード・クラスターの初期サイズ分布は, 材料のみならず PKA エネルギー, 照射温度, 損傷速度などに依存する。

7.2.2 自由点欠陥挙動

一方, 自由点欠陥はカスケード損傷によって形成される他に, それぞれのクラスターからの放出によっても濃度が増加する。また, 自由点欠陥はそれぞれの移動度によって決定される拡散により, 再結合や, I-cluster, V-cluster および永久シンクへの吸収が生じ, それぞれの濃度を減少させる。よって, 自由点欠陥である自己格子間原子と空孔の濃度変化の速度式は, それぞれ次のように与えられる。

$$\begin{aligned} \frac{dC_I(1)}{dt} = & \eta G_{dpa} \times \left(1 - \sum_{n=2}^{N_I} f_n^{icl} \right) - \left(\alpha_1^I C_V(1) + 2\beta_1^I C_I(1) \right) C_I(1) - \sum_{n=2}^{N_I} \beta_n^I C_I(1) C_I(n) \\ & - \sum_{n \neq 2}^{N_I} \beta_n^V C_I(1) C_V(n) - \beta_1^I C_I(1) C_S^I + \alpha_2^I C_V(1) C_I(2) + \sum_{n=2}^{N_I} \gamma_n^I C_I(n) + 2\gamma_2^I C_I(2) \end{aligned} \quad (7-2-2)$$

$$\begin{aligned} \frac{dC_V(1)}{dt} = & \eta G_{dpa} \times \left(1 - \sum_{n=2}^{N_I} f_n^{vcl} \right) - \left(\beta_1^V C_I(1) + 2\alpha_1^V C_V(1) \right) C_V(1) - \sum_{n=2}^{N_I} \alpha_n^V C_V(1) C_V(n) \\ & - \sum_{n=2}^{N_I} \alpha_n^I C_V(1) C_I(n) - \alpha_1^V C_V(1) C_S^V + \beta_2^V C_I(1) C_V(2) + \sum_{n=2}^{N_I} \gamma_n^V C_V(n) + 2\gamma_2^V C_V(2) \end{aligned} \quad (7-2-3)$$

ここで, C は欠陥濃度であり, 添字 I は格子間原子型欠陥, V は空孔型欠陥を意味する。また, C_S^I と C_S^V はそれぞれ自己格子間原子および空孔に対する永久シンク強度を示す。 α_n^I , α_n^V は I_n -cluster もしくは V_n -cluster に空孔が吸収されときの速度係数, β_n^I , β_n^V は I_n -cluster もしくは V_n -cluster に格子間原子が吸収されときの速度係数, γ_n^I , γ_n^V は I_n -cluster もしくは V_n -cluster から格子間原子もしくは空孔が解離する時の速度係数であ

る。これらの速度係数は、それぞれ、

$$\alpha_n^I = Z_{I-V}(n) \nu \exp(-E_m^V / kT) \quad (7-2-4)$$

$$\alpha_n^V = Z_{V-V}(n) \nu \exp(-E_m^V / kT) \quad (7-2-5)$$

$$\beta_n^I = Z_{I-I}(n) \nu \exp(-E_m^I / kT) \quad (7-2-6)$$

$$\beta_n^V = Z_{V-I}(n) \nu \exp(-E_m^I / kT) \quad (7-2-7)$$

$$\gamma_n^V = Z_{vcl-v}(n) \nu \exp(- (E_m^V + E_b^V(n)) / kT) \quad (7-2-8)$$

$$\gamma_n^I = Z_{icl-i}(n) \nu \exp(- (E_m^I + E_b^I(n)) / kT) \quad (7-2-9)$$

と与えられる。上式において、 $Z_{x-y}(n)$ は n 個の点欠陥からなる欠陥 x に対する点欠陥 y の結合もしくは解離の配位数 (combinatorial number) である。また、 ν は点欠陥の振動周波数、 E_m^x は点欠陥 x の移動エネルギー、 $E_b^x(n)$ は n 個の点欠陥からなる欠陥 x と点欠陥の結合エネルギーである。

7.2.3 クラスタ発達過程

カスケード損傷によって形成した一次欠陥は、自由点欠陥の吸収と放出により、二次欠陥への発達を開始する。第 3 章で述べたように、低放射化マルテンサイト鋼においては、純金属に対する MD 計算により提案されている I-cluster の一次元運動が、実質的に生じていないと考えられるため、本研究では、I-cluster の 1 次元運動を考慮しておらず、移動可能な欠陥は空孔と格子間原子のみである。以下に示すのは、自由点欠陥の吸収・放出による I-cluster と V-cluster の濃度変化の速度式である。

n 個の格子間原子からなる I-cluster 濃度の速度式は、

$$\begin{aligned} \frac{dC_I(n)}{dt} = & \frac{\eta G_{dpa} f_n^{icl}}{n} + \beta_{n-1}^I C_I(1) C_I(n-1) - (\alpha_n^I C_V(1) + \beta_n^I C_I(1) + \gamma_n^I) C_I(n) \\ & + (\alpha_{n+1}^I C_V(1) + \gamma_{n+1}^I) C_I(n+1) \end{aligned} \quad (7-2-10)$$

と与えられる。

n 個の空孔からなる V-cluster 濃度の速度式は、

$$\frac{dC_V(n)}{dt} = \frac{\eta G_{dpa} f_n^{vcl}}{n} + \alpha_{n-1}^V C_V(1) C_V(n-1) - (\alpha_n^V C_V(1) + \beta_n^I C_I(1) + \gamma_n^V) C_V(n) + (\beta_{n+1}^V C_I(1) + \gamma_{n+1}^V) C_V(n+1) \quad (7-2-11)$$

と与えられる。

7.2.4 パラメータ設定

7.2.4.1 カスケード損傷

カスケード効率に関しては、明確な値が示されていないが、本研究においては Stoller が圧力容器鋼の照射脆化のモデル化に用いた 0.1 を採用した [187-189]。また、カスケード内欠陥クラスター化効率に関しては、Phythian が MD 計算によって 10 個程度の格子間原子を含む I-cluster の直接形成を確認しているが [140]、大半は 4 個程度までに占められているので、本研究では 4 個までとした。また、V-cluster に関しては、MD 計算により bcc 鉄内での直接形成は無視できる程度とされているが [140]、実際には 77K で中性子照射したフェライト鋼においてマイクロボイドの形成が報告されているので [142]、やはり 4 個までは直接形成されると仮定した。

7.2.4.2 点欠陥パラメータ

自由点欠陥の移動エネルギーは、よく焼鈍した高純度金属に対して極低温での電子線照射を行い、その後の電気抵抗率の回復挙動から求められている [145]。しかし、これらの実験結果から得られたパラメータを、本研究で用いられている低放射化マルテンサイト鋼のような複雑な合金系においてそのまま適用することはできない。照射によって形成した自由点欠陥は、合金元素や不純物などのトラップ・サイトにおける捕獲と離脱を繰り返しながら移動し、見かけの移動エネルギーが増加するためである。本研究においては、Yoshida らが求めた Fe-10Cr 合金における値 [146, 147] を参考にして実効移動エネルギーを設定した。

純鉄における V-cluster の結合エネルギーに関しては、Caturla らが MD 計算を用いて、次のように求めている [193]。

$$E_b^V(n) = 1.73 - 2.59 \left[n^{2/3} - (n-1)^{2/3} \right] \text{ (eV)} \quad (7-2-12)$$

しかし、低放射化マルテンサイト鋼中の V-cluster は、合金元素や不純物の存在によって純鉄のそれよりも安定であると考えられるため、式 (7-2-12) をそのまま適用しても第 3 章で得られた陽電子寿命の回復挙動を説明することはできない。そこで、本モデルにおける

V-cluster の結合エネルギーは、Caturla らの結果を全体的に高くなるように調整した。また、I-cluster からの格子間原子の解離に関しても、

$$E_b^I(n) = 4.33 - 5.76 \left[n^{2/3} - (n-1)^{2/3} \right] \text{ (eV)} \quad (7-2-13)$$

のように結合エネルギーが求められており、大きいクラスターにおいては結合エネルギーが高いために通常の照射温度域では解離が生じないと考えられる。よって、5 個以上の格子間原子からなるクラスターでは、解離を考慮しなかった。

7.2.4.3 永久シンク強度

カスケード損傷によって生成した自由点欠陥の流入サイトとして、照射によって形成されたクラスターの他に、照射前から存在する転位線や粒界などのシンクがある。重照射下においては、点欠陥の流入による転位の上昇運動などに伴って、これらのシンクの密度は減少する場合もあるが、第 6 章で示したように、低放射化マルテンサイト鋼は比較的高温域においても高い相安定性を有しており、本章におけるモデル化の対象である低照射領域では、これらを永久シンクとして取り扱うことは妥当であると考えられる。転位は格子間原子を優先的に吸収するバイアス効果を持つため、ボイド・スエリングの原因のひとつとされているが[194]、低放射化マルテンサイト鋼においてボイドの形成が見られるのは数 10dpa 以上の重照射下においてであり、本研究のような低照射量域では転位バイアス効果は実質的に考慮しなくて良い可能性がある。そこで、予備計算を行ったところ、本モデルの計算対象である 1dpa 以下での組織発達に対して、転位バイアスの影響は無視できる程度であった。転位以外のシンクも含めて、Brailsford がシンク強度の詳細な理論を報告しているが[195]、低放射化マルテンサイト鋼においては、極めて高密度に存在している転位が点欠陥吸収サイトとして支配的であると考えられるため、ここでは全永久シンク強度として転位のシンク強度のみを考慮した。

7.2.4.4 モデルの検証

本モデルにおいて、最も任意性の強いパラメータは、I-cluster における格子間原子吸収の配位数 $Z_{x-y}(n)$ である。配位数は本来幾何学的に求まる値であり、平面的なループの構造をとる I-cluster における点欠陥反応の配位数は、クラスターを構成する格子間原子の数に比例する。しかし、電子線照射した Fe-10Cr 合金における転位ループの発達過程を調べた Yoshida らの研究によると、I-cluster における格子間原子吸収の配位数は極めて小さく、0.01~0.001 とされている[146, 147]。この原因として考えられるのは、格子間原子の吸収を妨げるような合金元素の I-cluster への偏析が挙げられる。一方、V-cluster における点

欠陥反応の配位数は、クラスターを構成する空孔の数の 2/3 乗に比例することが示されており[196]、本モデルにおいてもそれを適用した。

以上の考察をもとに設定したパラメータを、表 7.2.1 にまとめて示す。

表7.2.1 本研究の反応速度論モデルで用いた欠陥パラメータと照射パラメータ。

Displacement rate (dpa/sec)	6.6×10^{-8}
Cascade efficiency	0.1
Interstitial clustering parameters:	
total interstitial clustering fraction	0.3
di, tri, and tetra interstitial	
clustering fractions	0.15, 0.1, 0.05
cluster binding energies (eV)	0.5, 0.75, 1.25 ^{*1}
Vacancy clustering parameters:	
total vacancy clustering fraction	0.6
di, tri, and tetra vacancy	
clustering fractions	0.3, 0.2, 0.1 ^{*2}
binding energy for V_n -cluster (eV)	$1.6 \times ((n-1)^{0.8} - n^{0.8} + 1)$ ^{*3}
Interstitial migration energy (eV)	0.35
Vacancy migration energy (eV)	1.3
Vacancy formation energy (eV)	1.6
Sink strength of dislocation(/atom)	10^{-6} ^{*4}

^{*1} I-clusters larger than tetra clusters are assumed to be not decomposed.

^{*2,3} Vacancy clustering fractions and binding energies are assumed.

^{*4} Calculated from dislocation density of $1 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$.

7.3 モデル計算結果

7.3.1 一定温度照射

一定温度照射下における自由点欠陥とクラスター濃度の照射量依存性の計算結果を図 7.3.1 に示す。図には 220℃および 420℃照射のモデル計算結果を示しているが、照射温度の上昇と共に、擬定常点欠陥濃度の減少と、クラスター濃度の大幅な減少が見られた。これは、照射温度が上昇すると、空孔の移動が活発になるため、格子間原子との再結合の割合が増加し、擬定常点欠陥濃度の減少を引き起

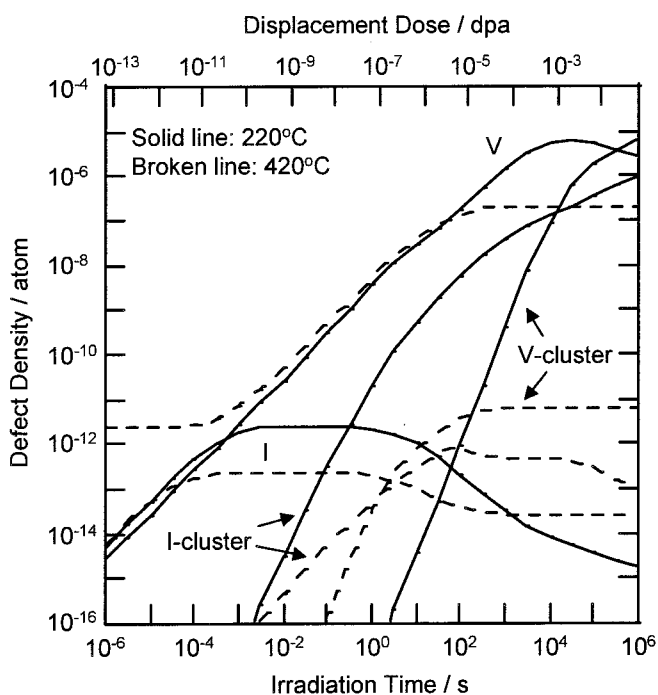


図7.3.1 反応速度論モデルによる点欠陥とクラスター濃度の照射量依存性と照射温度の影響。

こすことを反映している。また、V-cluster からの空孔の放出も活発になり、V-cluster 濃度の低下を引き起こすが、空孔の放出と流入が等しくなったところで、V-cluster 濃度は一定となる。220°C照射においては、I-cluster, V-cluster 濃度は照射量と共に増加していくが、I-cluster に着目すると、低照射領域では照射量の 2 乗に、 $10^{-7} \sim 10^{-5}$ dpa では 1 乗に、それ以降は 1/2 乗に比例している。V-cluster に関しても、照射量依存性が変化する照射量は異なるものの同様の傾向を示している。これらの結果は、第 3 章で考察したカスケード損傷下における欠陥濃度の照射量依存性を良く示しており、I-cluster 濃度変化の考え方の妥当性を良く表している。

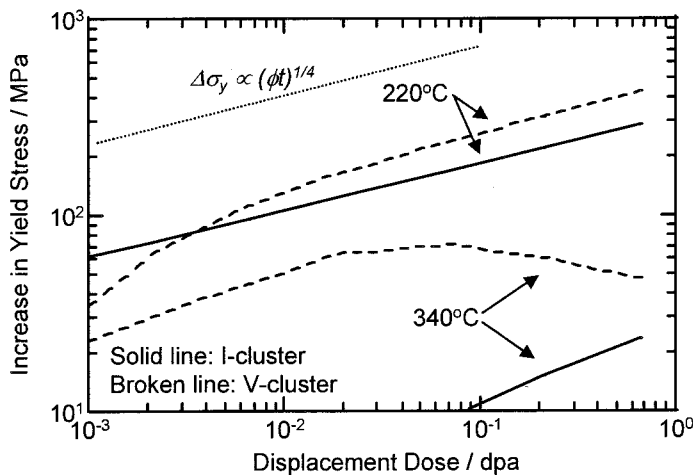


図7.3.2 反応速度論モデルとオロワンの式による照射硬化の照射量依存性の計算結果。

上記の反応速度論モデルによって計算されたクラスターの体積密度とサイズを、オロワンの式に適用することによって、照射硬化量の評価を行った結果を図 7.3.2 に示す。I-cluster および V-cluster の強度因子 α は 0.2 とした。220°C照射による照射硬化の計算結果は、照射硬化因子が I-cluster と V-cluster の何れの場合でも、第 3 章で得られた 1/4 乗則をよく再現している。しかし、本モデルで得られた V-cluster

濃度は、第 3 章で示した陽電子寿命測定結果から得られる濃度よりも著しく高いため、硬化への寄与も過大評価されている。このような相違を、絶対値として一致させていくことは、本研究の目的から外れるため避けるが、V-cluster のカスケード内クラスタリング効率を小さくすることなどによって調整は可能である。

7.3.2 温度変動照射

図 7.3.1 に示した 220°C照射の計算結果を初期値として、照射温度を 350°Cもしくは 420°C に上昇させて更に計算した結果を図 7.3.3 に示す。何れの場合においても、高温側への温度変動によって、欠陥濃度の減少が見られた。図 7.3.1 で示したように、照射温度の上昇は点欠陥の移動を活発にする。始めに移動度の大きい格子間原子がシンクに流入し、空孔がそれに続くことにより、両者の濃度は減少する。続いて V-cluster が分解、縮小して空孔を放出し、I-cluster の濃度は減少する。また、欠陥濃度の減少が始まるのに必要な照射量は 220/350°Cの方が大きいことがわかる。このように、高温側への温度変動後に生じると考えられる過飽和空孔による I-cluster の縮小現象を、反応速度論モデルによって表すこ

とができた。しかし、第5章で得られたような高温照射によるV-clusterの再出現を表すことはできなかった。

以上の結果をもとに、温度変動後の降伏応力変化を計算した結果を図7.3.4に示す。図には、硬化因子としてI-clusterもしくはV-clusterを考慮した場合と、両者を考慮した場合を示した。220/420°C照射では、昇温直後に降伏応力の減少が生じているが、220/350°C照射において減少が始まるには、更なる照射を必要としている様子がわかる。反応速度論モデルの結果から、主要な硬化因子を求めることはできない。しかし、本研究で提案したI-clusterによる硬化機構を否定するものでもなく、むしろ合理的に説明可能であることがわかる。

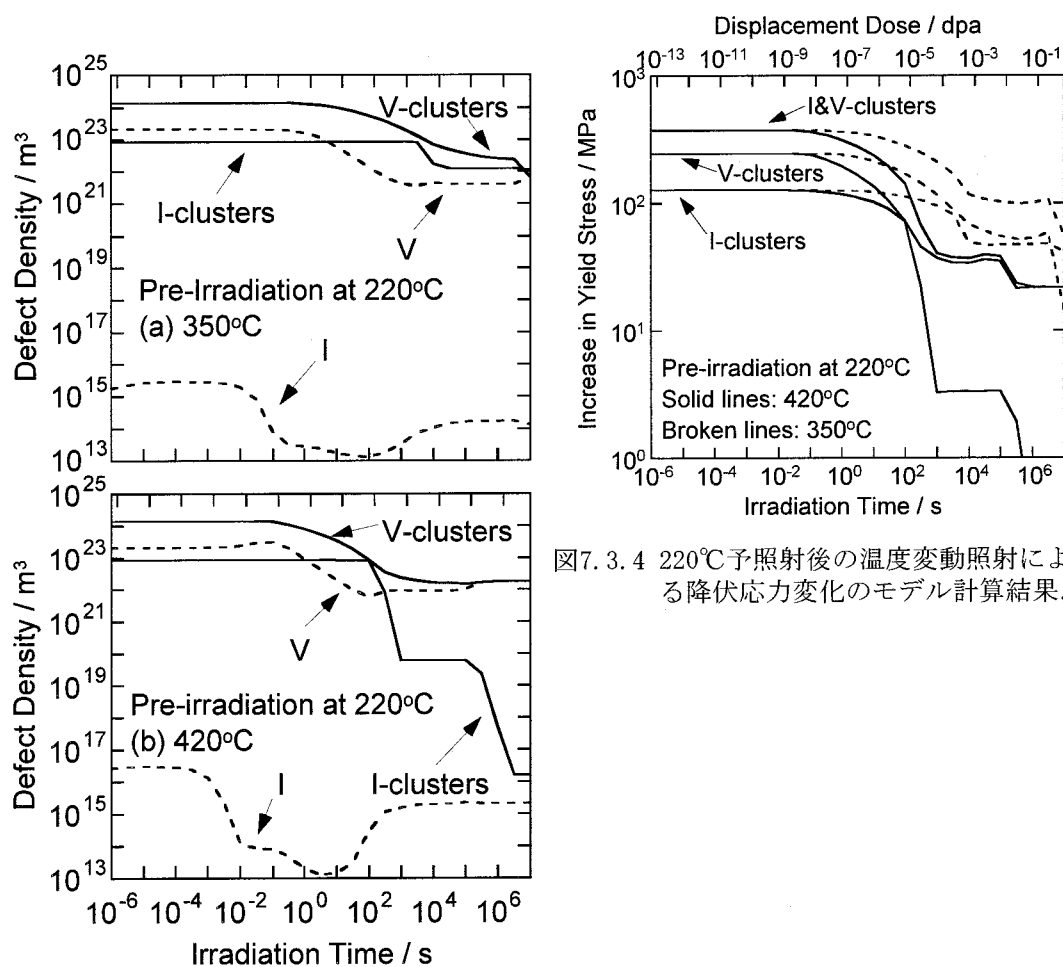


図7.3.4 220°C予照射後の温度変動照射による降伏応力変化のモデル計算結果。

図7.3.3 220°C予照射後の温度変動照射における欠陥濃度の照射量依存性。
(a) 220/350°C照射, (b) 220/420°C照射における反応速度論モデル計算結果を示す。

7.4 結論

照射硬化の照射量依存性や温度変動照射下における I-cluster と V-cluster の役割を明確にするために、反応速度論を用いた微細組織発達モデル計算を行った。第 3 章で提案した I-cluster による照射硬化の機構は、反応速度論的にも合理的なものであり、温度変動照射下においても整合性は保たれた。また、温度変動照射下において、昇温過程での V-cluster の分解による空孔の放出が I-cluster を縮小させるという微細組織変化を確認することができた。

第8章 総括

核融合炉の非定常運転に対応した照射条件の変動および複合条件下における低放射化マルテンサイト鋼の材料特性変化を明らかにすることを本研究の目的とし、以下のような成果を得た。

核融合炉環境下の材料中に多量に生じる核変換ヘリウムは、弾き出し損傷との複合作用により、材料特性変化に対して多大な影響を与えることが懸念されてきた。図 1.4.9 には、高照射量域におけるヘリウム脆化により、低放射化マルテンサイト鋼の使用限界が狭まることが示されているが、この根拠となっているニッケル添加法によるヘリウム脆化研究には問題点のあることを本研究で指摘した。すなわち、低放射化マルテンサイト鋼に本来含まれない元素であるニッケルは、自己格子間原子と強い相互作用を持つため、照射硬化の主要因子と考えられる転位ループの形成挙動に多大な影響を与えることを実験的に初めて見出した。その結果、同一の照射環境下において、ニッケル添加した鋼は未添加の鋼に比べて、ニッケルそのものに起因した著しい脆化を示すため、ヘリウム脆化の評価にニッケル添加法を用いるべきではないことを提言した。一方、照射脆化に及ぼすヘリウムの影響を明確にするため、サイクロトロンを用いて 580appm という高濃度のヘリウムが存在する状態での脆化挙動を世界に先駆けて評価した。サイクロトロンでの照射体積は小さいため、脆化挙動を調べるためには微小試験片技術の適用が不可欠である。本研究では、スモール・パンチ試験を用いて、ヘリウム注入による延性脆性遷移挙動を調べたところ、ヘリウムによる脆化の促進が全く観察されず、低放射化マルテンサイト鋼が耐ヘリウム脆化特性に優れていることを示した。その優れた耐性の理由を明らかにするために、微細組織観察や陽電子寿命測定を行い、低放射化マルテンサイト鋼がその製造過程において自発的に形成するマルテンサイト組織に含まれる多量の転位やラス境界がヘリウムを捕獲するため、他の材料のように粒界上にヘリウム・バブルが形成して粒界割れを引き起こすことが妨げられることによると結論した。すなわち、低放射化マルテンサイト鋼が本質的にヘリウム脆化に強い、優れた材料であることを示した。

変動条件下での照射試験が着目されたのは、一定温度照射による微細組織変化や材料劣化の評価を行うことを通じて、照射中の温度変動が微細組織発達過程、ひいては材料強度特性等に多大な影響を与える可能性が指摘されたためである。更に実際の核融合炉環境下においても、炉の起動・停止時やプラズマ・ディスラプション時に材料の照射温度が変化することが想定されており、温度変動照射試験の必要性が強く唱えられてきた。本研究は、低放射化マルテンサイト鋼の温度変動照射下での微細組織発達過程と材料強度特性変化を評価した唯一の研究事例である。本研究により、低放射化マルテンサイト鋼は他の材料で

報告されているような温度変動照射に特有の機械的特性変化の生じにくい材料であることを明らかにした。照射中に照射温度を上昇させることによって生じる機械的特性変化は、基本的に高温での焼鈍挙動と一致しており、特に温度変動照射特有の材料劣化事象は見出されなかった。

また、本研究においては、低放射化マルテンサイト鋼の使用限界を決定する劣化因子のひとつである照射硬化・脆化と空孔集合体挙動の関係に着目し、一定温度照射や複合・変動照射下における点欠陥挙動とそれに伴う材料特性変化に対して損傷組織形成素過程の機構論的解明を試みた。その結果、温度変動照射による低放射化マルテンサイト鋼の微細組織変化を追求することにより、空孔集合体の熱的安定性が及ぼす微小転位ループ発達過程や照射硬化挙動への影響が機構論的に明らかになった。ヘリウム効果に関しても同様なアプローチにより、ヘリウムと大きな相互作用を持つ空孔および空孔集合体が照射効果に及ぼす影響を知ることによって、低放射化マルテンサイト鋼の照射効果における空孔の役割を解明した。これらの成果は、従来の定常照射だけでは直接知ることの出来なかったものであり、低放射化マルテンサイト鋼の核融合炉実環境下での挙動を知るための照射相關論の構築にも有益な情報を提供した。

この様に、低放射化マルテンサイト鋼における複合・変動照射効果研究により、ヘリウム脆化と温度変動照射が、核融合炉材料としての使用に大きな問題を及ぼさないことを示した。また、従来不明な点が多かった低放射化マルテンサイト鋼における微細組織発達過程において、特に空孔とその集合体の挙動が明らかになった。

また、低放射化マルテンサイト鋼の相安定性に及ぼす時効および照射の影響を明らかにし、上記で議論した点欠陥挙動のみならず析出物形成に及ぼす合金元素の影響についても重要な知見を得た。

以上、本研究では、低放射化マルテンサイト鋼が耐中性子照射性および耐ヘリウム脆化性に優れていることを実験的かつ理論的に示した。今後は、実証炉環境下における材料挙動評価ならびに炉工学研究へと進むことが期待されるが、実証炉模擬環境を生み出すことは容易ではない。本研究による低放射化マルテンサイト鋼における照射効果の実験的かつ理論的解明は、今後の当該材料を用いた炉材料および炉工学研究の基盤になると期待される。

Appendix A フェライト鋼の金属組織概論

A.1 フェライト鋼の母相組織

鉄鋼材料の金属組織は、含まれる合金元素の種類・量と熱処理によって大きく変化することがよく知られている。ここでは、フェライト鋼の母相組織を決定する熱処理と合金元素の効果について概説する。

A.1.1 化学組成と母相組織の関係

図 A.1.1 は、鉄鋼の成分元素をオーステナイト生成元素とフェライト生成元素とに分け、それぞれを Ni 当量および Cr 当量に換算して母相組織との関連を示したシェフラーの状態図 (Schaeffler's diagram) である[197]。Schaeffler は Ni 当量と Cr 当量をそれぞれ、

$$\text{Ni}_{\text{eq}} = \text{Ni} + 30\text{C} + 0.5\text{Mn} \quad (\text{A-1-1})$$

$$\text{Cr}_{\text{eq}} = \text{Cr} + \text{Mo} + 1.5\text{Si} + 0.5\text{Nb} \quad (\text{A-1-2})$$

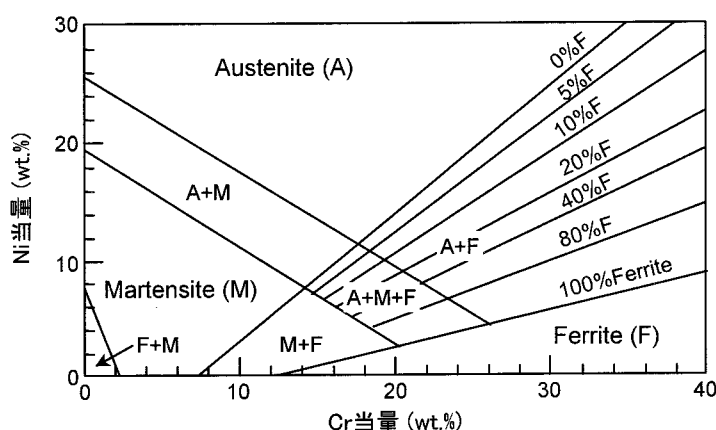
と表し、少量の C, Mn, Si, Nb を含む Fe-Cr-Ni ステンレス鋼に適用した。式(A-1-1, 2)の右辺の元素記号は、各元素の wt%濃度を表す。更に多種類の合金元素を含む Fe-Cr-Ni ステンレス鋼について、Hull は以下のような式、

$$\begin{aligned} \text{Ni}_{\text{eq}} = & \text{Ni} + 0.11\text{Mn} - 0.0086\text{Mn}^2 + 0.41\text{Co} \\ & + 0.44\text{Cu} + 18.4\text{N} + 24.5\text{C} \end{aligned} \quad (\text{A-1-3})$$

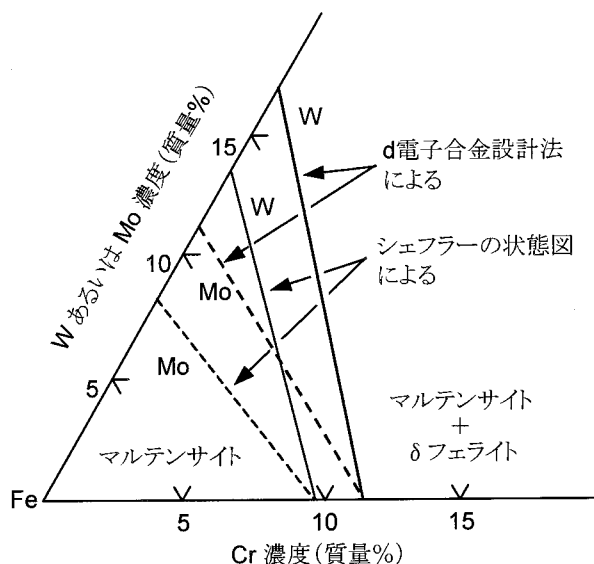
$$\begin{aligned} \text{Cr}_{\text{eq}} = & \text{Cr} + 1.21\text{Mo} + 0.48\text{Si} + 2.7\text{V} + 0.72\text{W} \\ & + 2.20\text{Ti} + 0.14\text{Nb} + 0.21\text{Ta} + 2.48\text{Al} \end{aligned} \quad (\text{A-1-4})$$

を提案した[198]。Abe らは、上記の Hull の式もしくは d 電子合金設計法を用いて、Fe-xCr-yW-0.1C 鋼のマルテンサイト/(マルテンサイト+δフェライト)相境界を、図 A.1.2 のように求めた[199]。図には比較のために Fe-xCr-yMo-0.1C 鋼の結果が破線で示されている。シェフラーの組織図を用いた方法から、Fe-xCr-yW-0.1C 鋼では Cr 濃度が 9.7wt%以上では W 無添加でも δフェライトが生じ、9wt%Cr のマルテンサイト中の W 固溶度は 1wt%と

なる。また、d 電子合金設計法からは、Cr 濃度が 11.6wt% 以上では W 無添加でも δ フェライトが生じ、9wt%Cr の時の W 固溶度は 3.7wt.% となる。これらの結果において、W の固溶度は Mo に比べて、シェフラーの状態図で約 1.7 倍、d 電子合金設計法で約 1.5 倍になるが、at% 濃度で表すと両者の固溶度はほぼ等しい。表 1.4.2 に示したように、実際の低放射化フェライト鋼の組織は、2.25Cr-2W 鋼においてはベイナイト单相、9Cr-2W 鋼においてはマルテンサイト单相、12Cr-2W 鋼においては δ フェライト/マルテンサイト 2 相であり、上述の d 電子合金設計法による計算結果と良い一致を見せている。



図A. 1. 1 シェフラーの状態図[197].



図A. 1. 2 シェフラーの状態図およびd電子合金設計法から求めた相境界線[199].

A. 1.2 溶体化処理と焼入れ

フェライト鋼の熱処理は、基本的に溶体化処理(normalizing)と、その後の焼戻し(tempering)からなる。目的とする鋼組織を得るためには、これらの熱処理を適切に行う必要がある。図 A. 1.3 に、Fe-xCr-0.1C 系鋼の見かけの平衡状態図を示す[200]。このときの Cr 当量は以下の式、

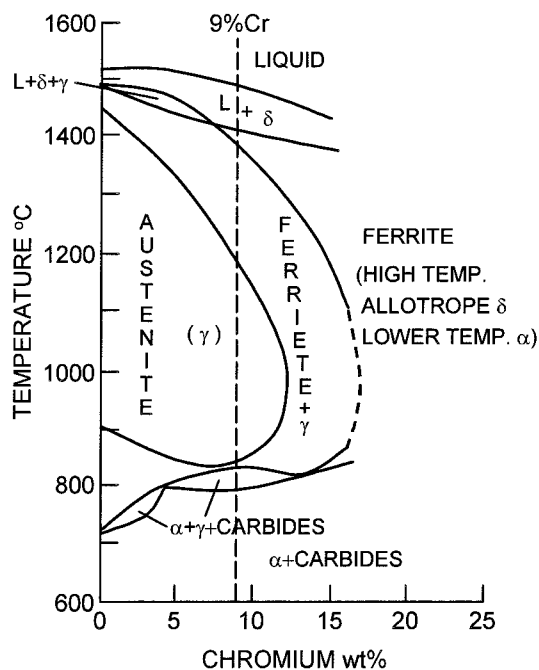
$$\begin{aligned} \text{Cr eq} = & \text{Cr} + 6\text{Si} + 4\text{Mo} + 1.5\text{W} + 11\text{V} + 5\text{Nb} + 12\text{Al (Soluble)} \\ & + 8\text{Ti} - 40\text{C} - 2\text{Mn} - 4\text{Ni} - 2\text{Co} - 30\text{N} - \text{Cu} \end{aligned} \quad (\text{A-1-5})$$

で与えられている。

マルテンサイト単相組織を得るためには、図 A. 1.3 中のオーステナイト領域内に加熱(溶体化処理)し、冷却する。冷却時にマルテンサイト変態開始温度 (M_s 点) に到達するとマルテンサイト相が生成されはじめ、マルテンサイト変態終了温度 (M_f 点) まで変態が進行する。Fe-Cr-Ni 系オーステナイトステンレス鋼における M_s 点を示す代表的な実験式として、

$$M_s [\text{K}] = 775 - 810\text{C} - 1230\text{N} - 13\text{Mn} - 30\text{Ni} - 12\text{Cr} - 54\text{Cu} - 6\text{Mo} \quad (\text{A-1-6})$$

が用いられている[201]。マルテンサイト変態は拡散を伴わない変態であり、面心立方構造(fcc)をもつオーステナイト相から過剰な炭素を含む過飽和フェライト相である体心正方



図A. 1.3 Fe-x%Cr-0.1%C鋼の見かけの平衡状態図[200]。

構造(bct)へと変化する。炭素鋼等の低合金鋼においてマルテンサイト変態を起こすためには、拡散によって生じるパーライト変態が生じないように、水冷等の焼入れ(quenching)を行わなければならない。しかし、フェライト系耐熱鋼のようなCr, Mo, W等の合金元素を含む鋼では、パーライト変態の速度が遅くなり、空冷程度の冷却速度でも焼入れとして十分である。

図 A. 1.3 から判るように、Cr 当量が約 11%を超えると、溶体化処理時に δ フェライト/オーステナイトの 2 相が存在し、冷却することによってオーステナイト相はマルテンサイト変態を起こし、 δ フェライト相は残留するため、

δ フェライト/マルテンサイト 2 相鋼が得られる。

2. 25Cr-2W 鋼のように Cr 量が低い場合、その下部組織はラス状のベイナイト（より狭義には下ベイナイト）と呼ばれるマルテンサイトに類似した組織となる。ベイナイト変態は M_s 点より高い温度で生じる変態であり、フェライト中に微細な炭化物が析出した組織を形成する。ベイナイト変態の機構は、パーライト変態のような拡散による核生成-成長機構と、マルテンサイト変態のような拡散を伴わない格子変態機構の間であると考えられている。これは、ベイナイト変態が起こる温度領域では Fe 原子自身の拡散が十分に起こらないのに対し、C 原子は非常に容易に拡散することが可能であるということに起因していると考えられている。

A. 2 鉄鋼材料における析出物

焼入れ後にマルテンサイト組織を有する鋼は、マルテンサイト変態によって生じた歪を緩和するために非常に多量の転位を有しているため、大きな内部応力が存在する。また、マルテンサイト組織は一般に硬いが著しく脆い。そこで、内部応力除去とともに、過飽和に固溶している炭素やその他の合金元素を析出させることによって安定な組織に近づけるために、焼戻しを行うことになる。ここでは、鉄鋼材料中に存在する析出物について概説する。

A. 2.1 炭化物

表 A. 2. 1 は、ステンレス鋼中に存在する炭化物の代表的なものを記している[202-204]。以下にそれぞれの炭化物の性質について解説する[203]。

○ MC 型炭化物

- Ti, Zr, Hf（第ⅣA 族元素）および V, Nb, Ta（第ⅥA 族元素）は、NaCl 型の立方晶炭化物を形成する。この型の炭化物は金属原子が最密に積み重なって面心立方格子を組み、その八面体格子間位置を C 原子が占めた結晶構造を有する Berthollide 化合物である。これらの炭化物は MC 型炭化物と総称されているが、実際の組成はほぼ $MC \sim M_2C$ の範囲にわたって変化しており、それに対応して単位胞中の原子数も 8~6 個（金属原子 4 個、C 原子 4~2 個）の範囲で変化する。単位胞中の C 原子の数が減少すると格子定数も変化する。ただし、V 炭化物のみは常に化学量論的組成である VC よりも C 濃度が低く、慣習的に V_4C_3 と表されることが多い。
- C 原子の位置は N 原子で置換できるのに加え、金属原子も相互に置換できるため、鋼中では純粹の MC 型炭化物として析出するのではなく、Nb(C, N), (Nb, V)(C, N) のような複合炭（窒）化物として生成することが多い。

- これらの NaCl 型炭（窒）化物はフェライト母相およびオーステナイト母相と特定の結晶方位関係をもって微細に析出し顕著な強化作用を及ぼす。結晶方位関係は次のように表される。

$$\begin{aligned} & (100)_{MC} // (100)_{\alpha-Fe}, \quad [010]_{MC} // [011]_{\alpha-Fe}, \\ & [001]_{MC} // (0-11)_{\alpha-Fe} \\ & (100)_{MC} // (100)_{\gamma-Fe}, \quad [010]_{MC} // [010]_{\gamma-Fe}, \\ & [001]_{MC} // [001]_{\gamma-Fe} \end{aligned}$$

- V, Nb, Ta については M_2C 型の六方晶炭化物も存在するが鋼中に生成することはほとんどない。

○ $M_{23}C_6$ 型炭化物

- Cr は 3 種類の 2 元炭化物 Cr_7C_3 , $Cr_{23}C_6$, Cr_3C_2 を形成する。これらの炭化物は Fe に対する溶解度が大きいので、高 Cr 鋼中でさえも純粋の Cr 炭化物としてではなく、かならず $(Cr, Fe)_{23}C_6$ のような形で析出する。さらにこれらの炭化物は Ni, Mn, Mo, W, V などの元素を固溶することができる。従って、種々の合金元素を含む鋼の中では、これらの炭化物は Cr のほかにいくつかの遷移元素金属元素を不特定の割合で含んでいるのが普通であり、 M_7C_3 型あるいは $M_{23}C_6$ 型炭化物と呼ばれることが多い。M の中味は鋼の組成、熱処理条件によって異なり、それに応じて格子定数も変化する。
- $M_{23}C_6$ はフェライト鋼中では主に結晶粒界に析出するが、オーステナイト鋼中ではマトリックス内にも析出する（この場合、硬化には寄与しない）。
- $M_{23}C_6$ は Mo および W に対する溶解度を持つが、これは金属原子の占める 92 個の位置のうち、8 個が比較的大きいすき間を有するためであり、これら 8 個の場所を Mo または W 原子が占めた場合には残り 84 個の位置にある Cr 原子を全て Fe 原子で置換でき、 $Fe_{21}Mo_2C_6$ または $Fe_{21}W_2C_6$ なる組成の複炭化物が生成しえると考えられている。

- W 炭化物 W は、 W_2C （六方晶）、 WC_x （立方晶）、 WC （六方晶）などの炭化物を形成する。 W_2C は、W を多量に含んだフェライト鋼の焼戻し時に見られ、針状に析出し、二次硬化の原因と考えられている[205]。結晶方位関係は次のように表される。

$$(0001)_{W_2C} // (111)_{\alpha-Fe}, \quad [-1011]_{W_2C} // [01-1]_{\alpha-Fe},$$

○ M_6C 型炭化物

- Mo または W を含む鋼中では上記の二元炭化物の他にいくつかの複炭化物が生成する。もっとも普通に生成する複炭化物は M_6C 型炭化物（ η 炭化物）であり、V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni を A, Zr, Hf, Nb, Ta, Mo, W などとすると $A_4B_2C \sim A_2B_4C$ の範囲の組成をもつ。

- M_6C と $M_{23}C_6$ はどちらも複雑な立方構造を持ち、格子定数も近い (M_6C が僅かに大きい)。X 線回折では構造因子の相違により両者を区別することは容易であるが、電子線回折の場合は多重反射効果のために区別しにくい場合が多い。

○ その他

- 鋼中では Mn が単独の炭化物を形成することではなく、常にセメンタイト、 χ 炭化物、 M_7C_3 、 $M_{23}C_6$ などの中に固溶した状態で存在する。
- Co および Ni の炭化物も鋼中には生じない。

A. 2. 2 金属間化合物

金属間化合物には微細に分散析出して強化作用を及ぼすものと、粗大塊状に析出して材料を脆化させるものがあるが、低放射化フェライト鋼における Laves 相 (Fe_2W) は後者の性質を示すことが知られている。Laves 相は、原子半径化合物とも呼ばれ、構成原子の原子半径の比が 1. 2:1 の場合に AB_2 型の化合物として形成されるもので、最密構造を有する。 Fe_2W の δ フェライト相中での結晶方位関係は次のように表される [205]。

$$(10\text{-}10)_{Fe_2W} // (111)_{\delta\text{-}Fe}, [0\text{-}110]_{Fe_2W} // [-101]_{\delta\text{-}Fe},$$

A. 2. 3 その他の析出物

以上に示した析出物の他に、鋼中には窒化物、酸化物、硫化物、ホウ化物、リン化物などが生成する。また、これらの単独化合物のほかに、金属元素が B, C, N, O, S, P, Si のうちの 2 種類以上と結びついて生成した複合炭化物も存在する。

表A. 2. 1 ステンレス鋼における代表的な析出相

析出相	結晶構造	格子定数 (Å)	析出の特徴	生成熱 (kcal/mol)
[炭化物]				
$M_{23}C_6$	立方晶 D _{8h} 構造 Cr ₂₃ C ₆ 型 N=116	$a_0=10.53-10.65$ $a_0=10.638$ (Cr ₂₃ C ₆)	粒内：転位上（サイコロ状） 双晶境界（粒状）， ラメラ状， Widmanstätten状 粒界：粒状，塊状， フィルム状，セル状	-98
η_1-M_6C	立方晶 E ₉₃ 構造 Fe ₃ W ₃ C型 N=112	$a_0=11.01-12.12$	粒界：塊状	
(MC)	立方晶 B1構造 NaCl型 N=8	$a_0=4.3127$ (TiC _{0.61}) - 4.3280 (TiC)	粒内：分散（粒状）， 転位上（微細）積層欠陥型析出	-44
V_4C_3		$a_0=4.1310$ (VC _{0.73}) - 4.3280 (VC _{0.87})	粒内：全面析出， 転位上積層欠陥型析出	-25
TaC		$a_0=4.4100$ (TaC _{0.70}) - 4.4555 (TaC _{0.99})	粒内：転位上（微細）積層欠陥型析出	-38
W ₂ C				
W ₂ C	六方晶	$a_0=3.00, c_0=4.70$	粒内：針状	
[金属相]				
α' 相	立方晶 A2構造 W型 N=2	$a_0=2.872-2.877$	粒内：二相分離（微細） GPゾーン状 ディスク状 球状	
[金属間化合物]				
(Laves相)	六方晶 C14構造 MgZn ₂ 型 N=58	$a_0=4.760, c_0=7.831$	粒内：板状，針状 粒界：塊状	
Fe ₂ Ti				
Fe ₂ Mo		$a_0=4.760, c_0=7.831$		
Fe ₂ W		$a_0=4.745, c_0=7.722$		

Appendix B 材料の硬化機構概論

本付録では、本研究を通して主要なテーマのひとつである照射硬化・脆化の機構を知るために、各種の硬化機構に関する概説を行う。

B.1 転位の運動

B.1.1 転位の運動と塑性変形

結晶性材料の塑性変形過程は、転位の運動とそれに対する障害物との相互作用によって記述される。先ず始めに、マクロ的な塑性歪みとミクロ的な転位の運動を関係付ける[206]。

材料の歪み速度を転位の運動として表すと、結晶のせん断歪み γ は、

$$\gamma = \rho b \bar{x} \quad (\text{B-1-1})$$

である。ここで、 ρ : 変形に寄与する転位の密度、 b : バーガース・ベクトルの大きさ、 \bar{x} : 転位の平均移動距離である。歪み速度は、この式の時間微分で与えられ、

$$\dot{\gamma} = \rho b \bar{v} + \dot{\rho} b \bar{x} \quad (\text{B-1-2})$$

となる。ここで、 \bar{v} : 転位の平均速度、 $\dot{\rho}$: 変形に寄与する転位の発生頻度である。この式の第1項と第2項が同時に成立することは矛盾があり、実際にはどちらかのみで歪み速度を与えることになる。第1項で表されるような転位の運動は粘性運動 (viscous motion) と呼ばれる。大きなパイエルス力 (Peierls force) を持った結晶中で熱活性化のもとで起こる転位の運動がこの典型的な例である。第2項で表される運動は飛行運動 (flight motion) と呼ばれる。パイエルス力が小さな fcc 結晶中などで、分散した溶質原子などの障害物によって固着されていた転位は、一つの障害物から外れると次の溶質原子に出会って固着されるまでは、極めて大きい速度で運動する。障害物につかまるとしばらく静止した後、固着が外れるとまた非常に高速で運動する。この場合でも、障害物による固着とそれらの離脱を何回か繰り返してある距離を動くと、その距離と時間から平均運動速度を求めることが出来るため、このような飛行運動の場合でも歪み速度を第1項で記述することが出来る。よって、歪み速度は、

$$\dot{\gamma} = \rho b \bar{v} \quad (\text{B-1-3})$$

と示すことが出来る。結晶を歪み速度 $\dot{\gamma}$ で塑性変形させるためには、転位を速度 \bar{v} で運動させるのに必要な応力（変形応力）を負荷する必要がある。

単軸応力の負荷は、塑性せん断歪みを歪み速度 $\dot{\gamma}_p$ で生じさせるように転位にせん断応力 τ を働かせる。転位の移動に対する障壁（barrier）は、長範囲の相互作用（long-range interaction）と、短範囲の相互作用（short-range interaction）という二つの成分に分けられる。長範囲の相互作用は、非熱的応力（athermal stress） τ_{ath} に影響を及ぼし、転位のすべり面上での位置と共にゆっくりと変化するが温度にはほとんど依存しない。一方、短範囲の相互作用は熱的応力（thermal stress） τ_{th} に影響を及ぼし、塑性歪み速度 $\dot{\gamma}_p$ と温度 T に依存する。非熱的応力を内部応力（internal stress）、熱的応力を有効応力（effective stress）と呼ぶ場合もある。この時、全せん断流動応力（total shear flow stress） τ は、

$$\tau = \tau_{th}(\dot{\gamma}_p, T) + \tau_{ath}(\dot{\gamma}_p) \quad (\text{B-1-4})$$

のように、両者の和で与えられる。以下に（B-1-4）式右辺における両項に関する機構を説明する。

B. 1. 2 熱的応力

転位の運動に対して短範囲の相互作用をもつ障害物の大きさは、1～数原子間距離である。分散した溶質原子はこの一例であり、このような障害物を短範囲障害物（short-range obstacle）と呼ぶ。短範囲障害物が分散している結晶において、転位が障害物による固着からの脱出、飛行運動、再固着を繰り返して運動する場合には、転位が障害物による固着を克服するときに熱エネルギーを必要とする。すなわち、固着からの転位の脱出は、応力の関与した熱活性化過程となる。以下に、転位の運動の熱活性化理論と、その結果生じる熱的応力について説明する。

塑性変形過程を単一の熱活性化過程と想定すると、塑性歪み速度 $\dot{\gamma}_p$ はアレニウスの式で示すことが出来る[80]。

$$\dot{\gamma}_p = \dot{\gamma}_{p0} \exp(-\Delta G(\tau_{th})/kT) \quad (\text{B-1-5})$$

ここで、 ΔG は転位が局所的な障害物を乗り越えるのに必要なギブス自由エネルギーである。また、pre-exponential factor である $\dot{\gamma}_{p0}$ は、運動転位の密度、平均自由転位長さ、一回の熱活性化ジャンプ後に転位によって覆われる面積、デバイ振動数の関数となる。活性化エネルギー ΔG は、

$$\Delta G = \Delta g - \tau_{th} l b X_{th} \quad (B-1-6)$$

と与えられ、 Δg は熱活性の間に局所的な原子変位のために生じるギブス自由エネルギーの変化であり、 $\tau_{th} l b X_{th}$ は熱応力によってなされる仕事である (l : 転位切片の平均長, b : バーガース・ベクトル, X_{th} : 障害物を前にした転位のサドルポイント位置と平衡位置の間の活性化距離)。これらの過程の活性化体積を、

$$V = -\partial \Delta G / \partial \tau \Big|_T \quad (B-1-7)$$

のように定義し、 $\dot{\gamma}_{po}$ と τ_{ath} が、応力、歪み速度の増加の間に顕著に変化しないと仮定すれば、

$$V = kT \left(\partial \ln(\dot{\gamma}_p / \dot{\gamma}_{po}) / \partial \tau \right) \cong kT \left(\partial \ln \dot{\gamma}_p / \partial \tau \right) \quad (B-1-8)$$

と表せる。活性化体積 V は、実験的に求めた $\dot{\gamma}_p$ と τ の関係によって、

$$V \cong kT (\Delta \ln \dot{\gamma}_p / \Delta \tau) \quad (B-1-9)$$

のように求めることが出来る。実験的には、引張試験の間に歪み速度を上昇させる (strain rate jump) ことによって、活性化体積を求めることができる。

活性化エネルギーは、活性化体積を応力に関して積分することによって求められる。

$$\Delta G = \int_{\tau_p} V d\tau \quad (B-1-10)$$

ここで、 τ_p は 0K での実効パイエルス応力である。上式は、 V が ΔG の偏微分であるために直接的には有効ではない。しかし、剛性率の温度による変化が無視出来る場合には、有効性は保たれる。

bcc 金属中のらせん転位のように大きなパイエルス力をもつ場合も、転位の運動を熱活性化過程として扱える。運動転位は、パイエルス・ポテンシャルを応力のもとで一度に乗り越えるわけではなく、キンク対 (kink pair) の形成とその転位線に沿った運動 (横方向の運動; sideward motion) によって移動していく。bcc 金属中のらせん転位に形成する滑らかなキンク (smooth kink) の場合、横方向の運動によるキンクのエネルギーはほとんど

変化しないため、キンクは飛行運動をする。すなわち、転位全体の運動速度は、キンク対の形成頻度によって決まる（この他にキンクの移動可能な距離なども関係する）。外部応力によって張り出した転位は、熱エネルギーの助けをかりて線張力を乗り越えることによってキンク対を形成する。キンク対間には引力が働いているため、横方向の運動をするためには、外力がこの引力に打ち勝つ必要がある。これらの過程についての活性化エネルギーをもとめることが出来るが詳細は省略する。

B.1.3 非熱的応力

転位の運動速度に依存しない相互作用の例としては、転位間の弾性相互作用がある。運動転位がこのような相互作用を持つ障害物を乗り越えなくてはならない距離は、原子間距離に比べてきわめて大きいので、このような障害物は長範囲障害物（long-range obstacle）と呼ばれる。転位密度 ρ_{dis} と変形応力 τ_{dis} の間には、

$$\tau_{dis} = \alpha_{dis} \mu b \sqrt{\rho_{dis}} \quad (B-1-11)$$

という Bailey-Hirsch の関係が実験から導かれている。ここで、 μ ：剛性率、 b ：バーガース・ベクトルである。

Frank-Read 源を活動させるのに必要な応力も転位速度には依存しない。式 (B-1-3) では転位密度は一定と仮定されているが、実際には塑性変形の進行と共に、Frank-Read 源の活動により転位密度は増加する。Frank-Read 源を活動させるのに必要な臨界応力 τ_{FR} は、

$$\tau_{FR} = \frac{\mu b}{l} \quad (B-1-12)$$

で与えられる。ここで、 l ：転位切片の長さである。

また、bcc 金属中の刃状転位のパイエルス力は fcc 金属中のそれと変わらないが、らせん転位のパイエルス力は大きい。このらせん転位が交差すべりを繰り返すことによって、Frank-Read 源を次々と作り出す二重交差すべり機構が、bcc 金属において重要になることにも追記しておく。

B.2 析出硬化

析出硬化は、過飽和固溶体に適切な時効処理を加えることによって、第 2 相粒子を析出させ、材料を硬化させる現象である。照射硬化と微細組織の相関を議論する上で、析出硬

化モデルが応用されるため、本節では析出硬化機構について概説する。

B.2.1 粒子の平均間隔

第2相粒子による硬化を考える上で、粒子間隔の定義を明確にしておく必要がある。粒子の平均間隔としては、三次元の平均間隔、二次元の平均間隔、一次元の平均間隔が考えられる。ここでは、粒子を球状と考え、単位体積あたりの粒子数を N 、粒子の直径を d とする。

二次元の場合には、考えている平面によって切られる粒子のみならず、その平面に接する粒子も含めて平均間隔を求める。粒子の中心間の平均間隔を L とすれば、 $L^2 d$ が一個の粒子の占める体積となる。これは $1/N$ に等しいから、

$$L = \frac{1}{\sqrt{Nd}} \quad (\text{B-2-1})$$

となる。この式は、粒子が平面上で正方形に配列している場合には正確な式であるため、正方配列近似の平均間隔と呼ばれる。粒子の表面間の平均間隔は $L - d'$ となる。ここで d' は粒子の有効直径である。粒子が平面によって切られる場合には、その断面積の直径は粒子の切られる場所によって異なるため、粒子の形状を考慮したのが有効直径である。球状粒子の場合には、同じ体積をもった円柱の断面積をもって平均断面積とする。

また、粒子の中心間の三次元での平均間隔は $N^{-1/3}$ であり、粒子の表面間の平均間隔は $N^{-1/3} - d$ である。

B.2.2 Orowan 機構

粒子に止められた転位線に力が加わると、転位は粒子の間を張り出していく。粒子が硬くて転位によって切られることがないとすると、粒子を囲んだ転位ループを残して、転位線全体は元通りの一本になって抜けていく。このようにして転位が粒子の間を抜けていく機構をOrowan機構と呼び、この機構を作用させるのに必要なOrowan応力 τ_{orowan} は、粒子の間隔を l とすると、

$$\tau_{\text{orowan}} = \frac{\mu b}{l} \quad (\text{B-2-2})$$

と示され、Frank-Read源を作用させる応力と一致している。しかし、実際の粒子間隔は不規則であり、転位は間隔の広いところから優先的に粒子間を抜けていく。そのために、転

位を運動させるのに必要な応力は、式 (B-2-2) よりも小さくなる。このように、粒子の分布における不規則性を考慮し、正方配列近似による粒子間隔を L とした時の Orowan 応力は、

$$\tau_{\text{orowan}} = \frac{0.8\mu b}{L} \quad (\text{B-2-3})$$

と与えられている。

B.2.3 Friedel 機構

Orowan 機構は、粒子が十分に硬く、転位によって切られないことを前提としているが、粒子の種類によっては、ある程度まで転位が粒子の間に張り出すと、粒子が切られてしまう場合がある。粒子が切られる時の臨界角（離脱角；breaking angle）を θ_c 、転位線の線張力を T とすれば、粒子を切るのに必要な応力は、

$$\tau_c = \frac{2T}{lb} \cos \frac{\theta_c}{2} \quad (\text{B-2-4})$$

と求められる。上式において、 l は転位線に沿った粒子の間隔である。

弱い粒子を切って進む転位は直線に近い形で運動する。転位がひとつの粒子から外れると、自由な部分の長さが長くなるので、次にはそこから離脱する可能性が高い。従って、転位の方向から見ると、横方向に次々と粒子の離脱が起こる。このような転位運動の機構を Friedel 機構と呼ぶ。粒子が弱くて転位によって切られやすい場合、すなわち θ_c の大きい場合には、応力の絶対値は低下し、粒子の分布における不規則性の影響が大きくなる。

以上の結果をまとめると、転位を運動させるのに必要な応力は、粒子の強さに従って次の 2 式で示すことができる。転位の線張力 $T = \mu b^2 / 2$ とすれば、

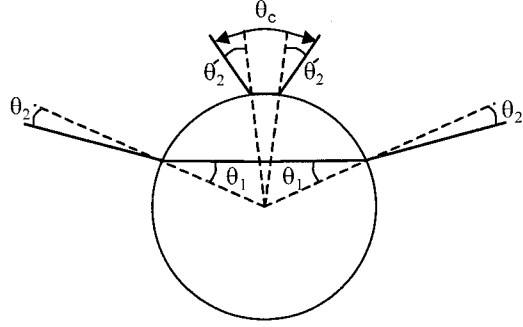
$$\tau_{\text{shear}} = \frac{2T}{Lb} \left(\cos \frac{\theta_c}{2} \right)^{3/2} = \frac{b\mu}{L} \left(\cos \frac{\theta_c}{2} \right)^{3/2} \quad \theta_c \geq 100^\circ \text{ (弱い粒子の場合)} \quad (\text{B-2-5})$$

$$\tau_{\text{shear}} = \frac{1.6T}{Lb} \cos \frac{\theta_c}{2} = \frac{0.8\mu b}{L} \cos \frac{\theta_c}{2} \quad \theta_c \leq 100^\circ \text{ (やや強い粒子の場合)} \quad (\text{B-2-6})$$

となる。ここで、 L は正方近似配列によるすべり面上の粒子の平均間隔である。粒子が転位によって切られない時、 $\theta_c = 0$ となり、式 (B-2-6) は式 (B-2-3) で示した Orowan 応力を与える。

B. 2. 4 Russell-Brown 機構

Russell らは, Fe-Cu 合金における時効硬化を説明するために, 剛性率効果を取り入れた析出硬化のモデルを提案した[207]. Fe 中に析出した Cu 析出物のように, 母相よりも低い剛性率をもつ分散した球状粒子を切って進む転位の様子を図 B. 2. 1 に示す.



図B. 2. 1 母相よりも低い剛性率をもつ球状粒子を切る転位の挙動[207].

転位が析出物界面を横切って進行する時, 析出物内における転位の単位長さあたりのエネルギーを E_{ppt} , 母相における転位の単位長さあたりのエネルギーを E とすると, 転位の平衡条件から,

$$E_{ppt} \sin \theta_1 = E \sin \theta_2 \quad (B-2-7)$$

を満たす. ここで, θ_1 と θ_2 は転位と析出物界面に対する垂線との間の角度である. 析出物における転位のエネルギーが, 母相におけるエネルギーよりも低い時 ($E_{ppt} < E$), 角度 θ_c は最小値を取り, τ は最大値を取る. これは, 転位が析出物から離れようとする時に生じ, この時 $\theta_1 = \pi/2$ となるため,

$$\theta_c = 2\theta_2 = 2 \sin^{-1} (E_{ppt} / E) \quad (B-2-8)$$

と求められる. この結果を式 (B-2-5, 6) に代入し,

$$\tau_{shear} = 0.8 \frac{\mu b}{L} \left[1 - \frac{E_{ppt}^2}{E^2} \right]^{1/2} \quad \sin^{-1} \frac{E_{ppt}}{E} \leq 50^\circ \quad (B-2-9)$$

$$\tau_{shear} = \frac{\mu b}{L} \left[1 - \frac{E_{ppt}^2}{E^2} \right]^{3/4} \quad \sin^{-1} \frac{E_{ppt}}{E} \leq 50^\circ \quad (B-2-10)$$

と与えられる.

析出物が極めて微小な時には, 析出物における転位のエネルギーは, E に等しくなければならない. また, 析出物が大きな時には, E_{ppt} に等しくなければならない. さらに, 転

位のエネルギーは、対数的に結晶の次元に依存する。よって、 E_{ppt}/E は析出物の半径 r の関数として、以下の式のように近似できると考えられる。

$$\frac{E_{ppt}}{E} = \frac{E_{ppt}^{\infty} \log \frac{r}{r_0}}{E^{\infty} \log \frac{R}{r_0}} + \frac{\log \frac{R}{r}}{\log \frac{R}{r_0}} \quad (\text{B-2-11})$$

ここで、 R : outer cut-off 半径, r_0 : inner cut-off 半径, E^{∞} , E_{ppt}^{∞} : 無限長の転位における単位長さあたりのエネルギーである。式における $E_{ppt}^{\infty}/E^{\infty}$ は、らせん転位と刃状転位に対して、

$$E_{ppt}^{\infty}/E^{\infty} = \mu_{ppt}/\mu \quad (\text{らせん転位}) \quad (\text{B-2-12})$$

$$E_{ppt}^{\infty}/E^{\infty} = \mu_{ppt}(1-\nu)/\mu(1-\nu_{ppt}) \quad (\text{刃状転位}) \quad (\text{B-2-13})$$

と与えられる。ここで、 μ : 母相の剛性率, μ_{ppt} : 析出物の剛性率, ν : 母相のポワソン比, ν_{ppt} : 析出物のポワソン比である。

B.3 せん断応力と単軸降伏応力の関係

多くの場合、実験的に求められるのは、単軸引張試験による降伏応力であるため、上記に示したせん断応力を降伏応力に変換する必要がある。従来の研究における変換手法には、適用を誤っている場合も見受けられるため、本節において Stoller らによる総説[208]を参考にして概説する。

B.3.1 降伏条件

実用材料は多軸応力状態で用いられることが多いため、単軸引張試験による降伏応力を多軸応力状態での降伏応力に変換する必要がある。von Mises の降伏条件は、弾性歪みエネルギーが臨界値に達する時、多軸応力状態での降伏が始まると仮定し、

$$\sigma_y^{shear} = \frac{1}{\sqrt{3}} \sigma_y^{tension} \quad (\text{B-3-1})$$

と与えられている。また、Tresca の降伏条件は、ある面での最大分解せん断応力の臨界値（臨界せん断応力）に達した時に降伏が生じると仮定し、

$$\sigma_y^{shear} = \frac{1}{2} \sigma_y^{tension} \quad (B-3-2)$$

と与えられている。

いずれにしても、これらの条件は、単軸引張応力状態での降伏応力を多軸応力状態での降伏応力に変換するためのものであり、せん断応力と単軸引張応力における降伏応力の変換に用いることは間違いである。

B. 3. 2 Taylor 因子

図 B. 3. 1 に示したように、単結晶試料に単軸引張応力を負荷した時の応力 σ_u は、材料のすべり面上に分解される。任意の面の垂線と負荷した応力の間の角度によって決定される分解せん断応力 τ_{shear} は、

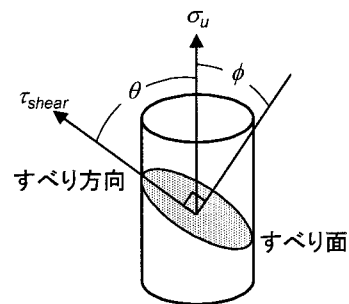
$$\tau_{shear} = \sigma_u \cos \phi \cdot \cos \theta \quad (B-3-3)$$

と表される。ある面上の分解せん断応力が臨界値を越える時に、転位のすべりによって降伏が生じる。Schmid 因子 m は、 σ_u に対する τ_s の比として定義されるため、

$$m = \cos \phi \cdot \cos \theta \quad (B-3-4)$$

と表される。よって、Schmid 因子の最大値は、 $m_{max} = \cos(\pi/4) \cdot \cos(\pi/4) = 0.5$ と与えられる。すなわち、単結晶における単軸引張応力の最小値 $\sigma_u^{min} = 2\tau_s$ が与えられる。

多結晶体においても、 σ_u と τ_s の関係は同一であるが、最大分解せん断応力が結晶粒によって異なる。更に、材料の適合条件や連続条件が、すべりに適した方向を向いた結晶粒の変形を制限するように振舞う。単純な適合条件の基準を適用し、全ての結晶粒が均一に変形すると仮定することによって、Taylor は多結晶体における単軸引張強度と分解せん断応力の関係を導き出した。多結晶体における Schmid 因子の逆数の実効的な平均値は Taylor 因子と呼ばれ、fcc 材



図B. 3. 1 単軸引張応力を負荷した単結晶の分解せん断応力。

料において 3.06 という値が求められている。すべり面が {110} 面であるときの bcc 材料における Taylor 因子も 3.06 と求められている。Taylor 因子の 3.06 という値は、分解せん断応力に対する単軸引張応力の比の上限であるが、広く成立する。

これらの結果から、本研究においても Taylor 因子に 3.06 を採用した。よって、多結晶体における単軸引張試験での降伏応力の変化量 $\Delta\sigma_y$ と、分解せん断応力の変化量 $\Delta\tau_{shear}$ の間には、

$$\Delta\sigma_y = 3.06\Delta\tau_{shear} \quad (B-3-5)$$

という関係が成立し、微細組織観察と単軸引張試験結果を関係付けることが可能となる。

B.4 欠陥集合体による硬化

B.4.1 強度因子

照射によって形成された欠陥集合体による硬化（照射硬化）は、前述した析出硬化の機構を応用して評価される。通常、欠陥集合体は、転位の運動に対して「弱い粒子」としてふるまうため、Friedel 機構を用いて硬化量の評価を行うが、

$$\alpha = \left(\cos \frac{\theta_c}{2} \right)^{3/2} \quad \text{or} \quad 0.8 \cos \frac{\theta_c}{2} \quad (0 < \alpha < 1) \quad (B-4-1)$$

として、式(B-2-5, 6)をまとめて示すことが多い。よって、欠陥集合体 i による降伏応力の上昇量 $\Delta\sigma_y^i$ は、

$$\Delta\sigma_y^i = \frac{3.06\alpha_i\mu b}{L_i} \quad (B-4-2)$$

と表される。ここで、 α_i は欠陥集合体の種類に依存する値とされており、強度因子と呼ばれる。式(B-2-1)で示した球状粒子に対する正方配列近似の平均間隔を用いると、式(B-4-2)は、

$$\Delta\sigma_y^x = 3.06\alpha_x\mu b\sqrt{N_x d_x} \quad (B-4-3)$$

と示される。一般的に、式(B-4-3)は、Orowan の式と呼ばれることが多い。以下に、転位

ループやキャビティなどによる硬化量評価について述べる。

○ 転位ループによる硬化

式 (B-4-3) によって、転位ループの硬化への寄与を評価する場合、転位ループの強度因子 α_{loop} は、0.1~0.5 という値が求められている [209-211]。

○ キャビティによる硬化

ボイドを剛性率 0 の球状粒子として考えると、B. 2. 4 節で示した Russell-Brown 機構を用いることによって、ボイドによる硬化量は、

$$\Delta\sigma_y^{void} = 3.06 \times 0.8 \times \mu b \sqrt{Nd} \quad (B-4-4)$$

と評価される [207, 212]。よって、強度因子 $\alpha_{void} = 0.8$ となる。しかし、実際にはこの値よりも小さい強度因子が用いられる場合も多く、例えば、

$$\alpha_{void} = 0.15 \times \left(\ln \frac{d/2}{r_c} + 0.83 \right) \quad (B-4-5)$$

に示されるように、ボイドのサイズに依存する強度因子も提案されている [209]。ここで、 r_c は転位芯半径 ($r_c = 2b$ 程度) であるので、例えばマイクロボイド程度の大きさの場合には $\alpha_{void} = 0.15$ 程度になる。

また、式 (B-4-2) に示した Orowan の式に対して、様々な補正が試みられている。例えば、Kelly は、線張力の補正により、

$$\Delta\tau_{shear} = \alpha \frac{0.83\mu b}{[(Nd)^{-0.5} - d]} \frac{\ln(d/r_0)}{2\pi(1-\nu)^{0.5}} \quad (B-4-6)$$

という式を導出した [213]。Grossbeck らは、バブル・析出物複合体をひとつの障害物として取り扱い、式 (B-2-15) を用いて硬化量を評価している [210]。

B. 4. 2 多種類の硬化因子が存在する場合

運動転位の障害物は、長範囲 (long range) と短範囲 (short range) のものに分けられ

る※。長範囲の障害物は、運動転位とネットワーク転位の相互作用により生じるため、式(B-1-11)によって示される。また、運動転位のすべり面上にある障害物は、転位が障害物に近づいた時に短範囲の力を生じさせる。このような障害物は、析出物および転位ループなどの欠陥集合体によってもたらされる。このような障害物が混在している時の降伏応力の上昇は、

$$\Delta\sigma_y = \Delta\sigma_{LR} + \Delta\sigma_{SR} \quad (\text{B-4-7})$$

で与えられる。長範囲の項 $\Delta\sigma_{LR}$ は、式(B-1-11)より、

$$\Delta\sigma_{LR} = 3.06\alpha_{dis}\mu b\sqrt{\rho_{dis}} \quad (\text{B-4-8})$$

で与えられる。 α_{dis} に関しては、0.15～0.3 という値が求められている[212]。

一方、短範囲の項 $\Delta\sigma_{SR}$ は、式(B-4-2)を用いて、

$$\Delta\sigma_{SR} = \sqrt{\sum_i (\Delta\sigma_y^i)^2} \quad (\text{B-4-9})$$

と表される。

※ 運動転位が固着から脱出する熱活性過程における障害物も短範囲障害物と呼ばれているが、ここでの障害物は非熱的応力を生むものであり同一ではない。定義が混乱しているが、注意すべき点である。

($\Delta\sigma_{ath} = \Delta\sigma_{LR} + \Delta\sigma_{SR}$ となる)。

参考文献

- [1] 例えば, 池上英雄他編, 核融合研究 I—核融合プラズマ—, 名古屋大学出版会, 1996 年.
- [2] J. J. Duderstadt and L. J. Hamilton, 成田正邦 藤田文行 共訳, 原子炉の理論と解析 (上), 現代工学社.
- [3] 例えば, 学術月報, Vol. 51, No. 2 (1998) 40.
- [4] 岸本浩, 学術月報, Vol. 51, No. 2 (1998) 35.
- [5] ITER-FEAT 概要設計報告書国内評価報告書, 原子力委員会第 135 回核融合会議 ITER/EDA 技術部会 (資料第 135-2 号), 1999 年.
- [6] 藤原正巳, 学術月報, Vol. 51, No. 2 (1998) 12.
- [7] 関口忠, 学術月報, Vol. 51, No. 2 (1998) 8.
- [8] 中期的展望に立った核融合炉第一壁構造材料の開発の進め方について, 原子力委員会第 136 回核融合会議計画推進小委員会 (資料第 136-3 号), 1999 年.
- [9] 例えば, 池上英雄他編, 核融合研究 II—核融合炉工学—, 名古屋大学出版会, 1995 年.
- [10] 核融合炉をめざして, 日本原子力研究所.
- [11] ITER 設計報告, プラズマ・核融合学会誌, Vol. 73, supplement (1997).
- [12] 香山晃, プラズマ・核融合学会誌, Vol. 75, No. 9 (1999) 1018.
- [13] 例えば, 鈴木哲也, 京都大学博士学位論文, 1999 年.
- [14] H. Trinkaus, H. Ullmaier, J. Nucl. Mater. 212-215 (1994) 303.
- [15] A. Kohyama, A. Hishinuma, D.S. Gelles, R.L. Klueh, W. Dietz, K. Ehrlich, J. Nucl. Mater. 233-237 (1996) 138.
- [16] 核融合実用炉を目指した材料開発の現状 (日米科学技術協力・FFTF/MOTA 照射研究成果), 核融合科学研究所, 1993 年.
- [17] G.J. Butterworth and S. R. Keown, J. Nucl. Mater. 186 (1992) 283.
- [18] 核融合エネルギーの技術的実現性, ITER 計画の広がりと裾野としての基礎研究に関する報告書, 原子力委員会第 136 回核融合会議開発戦略検討分科会 (資料第 136-2 号), 1999 年.
- [19] 香山晃, プラズマ・核融合学会誌, Vol. 76, No. 3 (2000) 213.
- [20] T. Lechtenberg, J. Nucl. Mater. 133&134 (1985) 149.
- [21] 井形直弘, 金属, 1986 年 1 月号, pp. 29-33.
- [22] 竹山太郎, 金属, 1986 年 1 月号, pp. 24-28.
- [23] P. Dubuisson, D. Gilbon and J.L. Séran, J. Nucl. Mater. 205 (1993) 178.
- [24] M. Rieth, B. Dafferner, H.D. Röhrig, J. Nucl. Mater. 233-237 (1996) 351.

- [25] A. Kohyama, A. Hishinuma, D.S. Gelles, R.L. Klueh, W. Dietz, K. Ehrlich, J. Nucl. Mater. 233-237 (1996) 138.
- [26] R. L. Klueh, Ji-Jung Kai, D.J. Alexander, J. Nucl. Mater. 225 (1995) 175.
- [27] Y. Kohno, A. Kohyama, T. Hirose, M.L. Hamilton, M. Narui, J. Nucl. Mater. 271&272 (1999) 145.
- [28] K. Shiba, R.L. Klueh, Y. Miwa, J.P. Robertson, A. Hishinuma, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 358.
- [29] Y. Seki, T. Tabara, I. Aoki, S. Ueda, S. Nishio, R. Kurihara, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 1791.
- [30] A. Kohyama, M. Seki, K. Abe, T. Muroga, H. Matsui, S. Jitsukawa, S. Matsuda, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 20.
- [31] 芝清之, 菱沼章道, 遠山晃, 正村克身, 「低放射化フェライト鋼 F82H IEA ヒート材の特性-IEA ラウンドロビン試験中間報告(1)-」, JAERI-TECH97-038 (1997).
- [32] B. van der Schaaf, D.S. Gelles, S. Jitsukawa, A. Kimura, R.L. Klueh, A. Möslang, G.R. Odette, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 52.
- [33] N. Inoue, T. Muroga, A. Nishinuma, O. Motojima, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 1248.
- [34] R.H. Jones, H.L. Heinisch, K.A. McCarthy, J. Nucl. Mater. 271&272 (1999) 518.
- [35] 三浦幸俊他, 第三回核融合エネルギー連合講演会予稿集 (2000) 121.
- [36] T. Misawa, Y. Hamaguchi and M. Saito, J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) 749.
- [37] A. Kimura, H. Kayano, T. Misawa, H. Matsui, J. Nucl. Mater. 212-215 (1994) 690.
- [38] K. Shiba, M. Suzuki, A. Hishinuma and J.E. Pawel, ASTM STP 1270 (1996) 753.
- [39] Y. Kohno, A. Kohyama, T. Hirose, M.L. Hamilton, M. Narui, J. Nucl. Mater. 271&272 (1999) 145.
- [40] A. Kimura, T. Morimura, M. Narui, H. Matsui, J. Nucl. Mater. 233-237 (1996) 319.
- [41] K. Shiba, R.L. Klueh, Y. Miwa, J.P. Robertson, A. Hishinuma, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 358.
- [42] 森村太郎, 東北大学博士論文, 1997 年
- [43] F. Abe, T. Noda, H. Araki, M. Narui and H. Kayano, J. Nucl. Mater. 191-194 (1992) 845.
- [44] F. Abe, M. Narui and H. Kayano, Mater. Trans., JIM, Vol. 34, No. 11 (1993) 1053.
- [45] A. Kimura, M. Narui, T. Misawa, H. Matsui, A. Kohyama, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 1340.
- [46] P.J. Maziasz and R.L. Klueh, ASTM STP 1046 (1989) 35.
- [47] T. Morimura, A. Kimura, H. Matsui, J. Nucl. Mater. 239 (1996) 118.
- [48] K. Shiba, M. Suzuki, A. Hishinuma, J. Nucl. Mater. 233-237 (1996) 309.
- [49] E. Wakai, N. Hashimoto, Y. Miwa, J.P. Robertson, R.L. Klueh, K. Shiba, S. Jitsukawa, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 799.
- [50] K. Shiba, A. Hishinuma, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 474.

- [51] Y. Miwa, E. Wakai, K. Shiba, N. Hashimoto, J.P. Robertson, A.F. Rowcliffe, A. Hishinuma, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 334.
- [52] T. Yamamoto, H. Yoshida, T. Nagasaka, K. Fukumoto and H. Matsui, in: Proceedings of the JUPITER workshop on Recent Progress in Reduced Activation Ferritic Steels, 1-2 December 1999, I.A.E., Kyoto University.
- [53] E.I. Materna-Morris, M. Rieth and K. Ehrlich, ASTM STP 1366 (2000) 597.
- [54] E. van Osch, M. Horsten, G.E. Lucas and G.R. Odette, , ASTM STP 1366 (2000) 612.
- [55] L.K. Mansur and M.L. Grossbeck, J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) 130.
- [56] R.L. Klueh, D.J. Alexander, J. Nucl. Mater. 218 (1995) 151.
- [57] R.L. Klueh and D.J. Maziasz, J. Nucl. Mater. 187 (1992) 43.
- [58] R.L. Klueh and D.J. Alexander, J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 733.
- [59] R.L. Klueh and D.J. Maziasz, ASTM STP 1046 (1989) 246.
- [60] D.J. Maziasz and R.L. Klueh, ASTM STP 1046 (1989) 35.
- [61] R.L. Klueh and J.M. Vitek, J. Nucl. Mater. 161 (1989) 13.
- [62] R.L. Klueh, J.M. Vitek, W.R. Corwin and D.J. Alexander, J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) 973.
- [63] R.L. Klueh, M.A. Sokolov, K. Shiba, Y. Miwa, J.P. Robertson, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 478.
- [64] S. Ohnuki and K. Shiba, Journal of Plasma and Fusion Research Vol. 76, No. 4 (2000) 354.
- [65] J. Bertsch, R. Lindau, A. Möslang, J. Nucl. Mater. 233-237 (1996) 276.
- [66] U. Stamm and H. Schroeder, J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) 1059.
- [67] A. Möslang and D. Preininger, J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) 1064.
- [68] R. Lindau, A. Möslang, D. Preininger, M. Rieth, H.D. Röhrig, J. Nucl. Mater. 271&272 (1999) 450.
- [69] A. Hasegawa, N. Yamamoto and H. Shiraishi, J. Nucl. Mater. 202 (1993) 266.
- [70] A. Hasegawa and H. Shiraishi, J. Nucl. Mater. 191-194 (1992) 910.
- [71] H. Ullmaier, E. Camus, J. Nucl. Mater. 251 (1997) 262.
- [72] K.K. Bae, K. Ehrlich and A. Möslang, J. Nucl. Mater. 191-194 (1992) 905.
- [73] A. Möslang and D. Preininger, J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) 1064.
- [74] J. Chen, P. Jung, J. Nucl. Mater. 212-215 (1994) 559.
- [75] J. Bertsch, S. Meyer, A. Möslang, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 832.
- [76] N. Yamamoto, J. Nagakawa, K. Shiba, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 400.
- [77] Y. Katoh, H. Tanigawa, T. Muroga, T. Iwai, A. Kohyama, J. Nucl. Mater. 271&272 (1999) 115.
- [78] H. Tanigawa, S. Jitsukawa, A. Hishinuma, M. Ando, Y. Katoh, A. Kohyama, T. Iwai, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 470.
- [79] M.I. Luppö, C. Bailat, R. Schäublin, M. Victoria, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 483.
- [80] P. Spätig, R. Schäublin, S. Gyger, M. Victoria, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 1345.

- [81] Y.Chen, P. Spätig, M. Victoria, J. Nucl. Mater. 271&272 (1999) 128.
- [82] P. Marmy and M. Victoria, J. Nucl. Mater. 191-194 (1992) 862.
- [83] R. Schäublin, M. Victoria, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 339.
- [84] Y. Dai, F. Carsughi, W.F. Sommer, G.S. Bauer, H. Ullmaier, J. Nucl. Mater. 276 (2000) 289.
- [85] Y. Dai, S.A. Maloy, G.S. Bauer, W.F. Sommer, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 513.
- [86] H. Kayano, A. Kimura, M. Narui, T. Kikuchi and S. Ohta, J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 671.
- [87] R.L. Klueh, D.J. Alexander, M. Rieth, J. Nucl. Mater. 273 (1999) 146.
- [88] 鶴飼重治, サイクル機構技報 No. 7 (2000) 83.
- [89] T. Kuwabara, H. Kurishita, S. Ukai, M. Narui, S. Mizuta, M. Yamazaki, H. Kayano, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 1236.
- [90] D.K. Mukhopadhyay, F.H. Froes, D.S. Gelles, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 1209.
- [91] A. Kimura et al, to be published.
- [92] A. Hishinuma, A. Kohyama, R.L. Klueh, D.S. Gelles, W. Dietz, K. Ehrlich, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 193.
- [93] M. Kiritani, T. Yoshiie, S. Kojima, Y. Satoh and K. Hamada, J. Nucl. Mater. 174 (1990) 327.
- [94] M. Narui, T. Sagawa, T. Shikama, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 372.
- [95] <http://www.inel.gov/capabilities/nuc-tech/atr.html>
- [96] 「核融合実用炉を目指した材料開発の現状 (日米科学技術協力・FFTF/MOTA 照射研究計画)」, 核融合科学研究所, 1993 年.
- [97] <http://www.cyrilic.tohoku.ac.jp/index-j.html>
- [98] P. Hautojärvi and C. Corbel, Proceeding of NATO Advanced Research Workshop on Advances with Positron Spectroscopy of Solids and Surfaces, Varenna, July 16-17, (1993) 491.
- [99] 堂山昌男, 長谷川雅幸, その他, 特集「陽電子消滅法による材料評価の最近の進展」, まてりあ, 第 35 巻, 第 2 号, 1996 年.
- [100] 白井泰治, まてりあ, 第 37 巻, 第 1 号, 1998 年.
- [101] P. Kirkegaard, M. Eldrup, O.E. Morgensen and N. Pedersen, Computer Phys. Commun. 23 (1981) 307.
- [102] P. Kirkegaard and M. Eldrup, Computer Phys. Commun. 7 (1974) 401.
- [103] M.J. Puska and R.M. Nieminen, J. Phys. F13 (1983) 333.
- [104] A. Hempel, M. Saneyasu, Z. Tang, M. Hasegawa, G. Brauer, F. Plazaola, S. Yamaguchi, F. Kano and A. Kawai, ASTM STP 1366 (2000) 560.
- [105] E. Kuramoto, H. Abe, M. Takenaka, F. Hori, Y. Kaminura, M. Kimura, K. Ueno, J. Nucl. Mater. 239 (1996) 54.
- [106] K.O. Jensen, R.M. Nieminen, Phys. Rev., Vol. 36, No. 16 (1987) 8219. [107] 朝倉健太郎, 香山晃, 金属 8 月号 (1985 年) 28.
- [108] S. Miyazaki, K. Shibata and H. Fujita, Acta. Met. 27 (1979) 855.

- [109] Y. Kohno, A. Kohyama, M.L. Hamilton, T. Hirose, Y. Katoh, F.A. Garner, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 1014.
- [110] 松井秀樹, 金属 8 月号 (1985) 8.
- [111] W.L. Hu and D.S. Gelles, Proc. Topical. Conf. On Ferritic Alloys for USE in Nuclear Energy Technologies (1983) 631.
- [112] B.S. Loudon, A.S. Kumar, F.A. Garner, M.L. Hamilton and W.L. Hu, J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) 662.
- [113] W.R. Corwin, R.L. Klueh and J.M. Vitek, J. Nucl. Mater. 122&123 (1984) 343.
- [114] W.R. Corwin and A.M. Hougland, ASTM STP 888 (1986) 325.
- [115] H. Kurishita, H. Kayano, M. Narui, M. Yamazaki, Y. Kano and I. Shibahara, Mater. Trans., JIM, Vol. 34, No. 11 (1993) 1042.
- [116] J.M. Baik, J. Kameda and O. Buck, ASTM STP 888 (1986) 92.
- [117] T. Misawa, T. Adachi, M. Saito and Y. Hamaguchi, J. Nucl. Mater. 150 (1987) 194.
- [118] M. Suzuki, M. Eto, K. Fukaya, Y. Nishiyama, T. Kodaira, T. Oku, M. Adachi, A. Umino, I. Takahashi, T. Misawa and Y. Hamaguchi, J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 441.
- [119] T. Misawa, S. Nagata, N. Aoki, J. Ishizaka and Y. Hamaguchi, J. Nucl. Mater. 169 (1989) 225.
- [120] A. Kimura, T. Morimura, R. Kasada, H. Matsui, A. Hasegawa and K. Abe, ASTM STP 1366 (2000) 626.
- [121] F. Abe, T. Noda, H. Araki, M. Narui and H. Kayano, J. Nucl. Mater. 166 (1989) 265.
- [122] B.N. Singh, A.J.E. Foreman, H. Trinkaus, J. Nucl. Mater. 249 (1997) 103.
- [123] B.N. Singh, A. Horsewell, P. Toft, J. Nucl. Mater. 271&272 (1999) 97.
- [124] G.R. Odette and G.E. Lucas, ASTM STP 1046 (1990) 323.
- [125] J.T. Buswell, W.J. Phythian, R.J. McElroy, S. Dumbill, P.H.N. Ray, J. Mace, R.N. Sinclair, J. Nucl. Mater. 225 (1995) 196.
- [126] JMTR 照射ハンドブック, 日本原子力研究所, 1987 年.
- [127] H. Tsai, R.V. Strain, I. Gomes, D.L. Smith, L.R. Greenwood, H. Matsui, DOE/ER-0313/21 (1996) 303.
- [128] A.C. Damask and G.J. Dienes, Point Defects in Metals, Gordon and Breach, New York, London, 1963.
- [129] D.S. Gelles, A. Kimura and T. Shibayama, ASTM STP 1366 (2000) 535.
- [130] C. Hidalgo, G. González-Doncel, S. Linderroth, J. San Juan, Phys. Rev. B 45, No. 13 (1992) 7017.
- [131] S.J. Zinkle, J. Nucl. Mater. 150 (1987) 140.
- [132] M. Kiritani, J. Nucl. Mater. 206 (1993) 156.
- [133] M. Kiritani, Y. Fukuta, T. Miwa, E. Iiyoshi, Y. Kizuka, S. Kojima, N. Matsunami, J. Nucl. Mater. 212-215 (1994) 192.

- [134] M. Kiritani, J. Nucl. Mater. 216 (1994) 220.
- [135] M. Kiritani, J. Nucl. Mater. 251 (1997) 237.
- [136] S.B. Fisher, J.E. Harbottle and N. Aldridge, Phil. Trans. R. Soc. Lond. A 315 (1985) 301.
- [137] H.L. Heinisch, J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) 121.
- [138] M.A. Kirk, I.M. Robertson, M.L. Jenkins, C.A. English, T.J. Black and J.S. Vetrano, J. Nucl. Mater. 149 (1987) 21.
- [139] V.G. Kapinos, Yu.N. Osetskii and P.A. Platonov, J. Nucl. Mater. 170 (1990) 66.
- [140] W.J. Phythian, R.E. Stoller, A.J.E. Foreman, A.F. Calder, D.J. Bacon, 223 (1995) 245.
- [141] P. Hautojärvi, L. Pöllänen, A. Vehanen and J. Yli-Kauppi, J. Nucl. Mater. 114 (1983) 250.
- [142] E. Kuramoto, Y. Takano, N. Kikuchi and M. Takenaka, J. Nucl. Mater. 141-143 (1986) 829.
- [143] A. Vehanen, P. Hautojärvi, J. Johansson, J. Yli-Kauppi and P. Moser, Phys. Rev. B 25 (1982) 762.
- [144] E. Kuramoto, J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 1019.
- [145] S. Takaki, J. Fuss, H. Kugler, U. Dedek and H. Schultz, Rad. Eff. 79 (1983) 87.
- [146] N. Yoshida, A. Yamaguchi, T. Muroga, Y. Miyamoto and K. Kitajima, J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) 1232.
- [147] 吉田直亮, 核融合炉材料フォーラム 2 (1990) 362.
- [148] D.S. Gelles, G.L. Hankin, M.L. Hamilton, J. Nucl. Mater. 251 (1997) 188.
- [149] D.S. Gelles, G.L. Hankin, M.L. Hamilton, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 1216.
- [150] H. Ullmaier, Nuclear Fusion, Vol. 24, No. 8 (1984) 1038.
- [151] D.S. Gelles, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 838.
- [152] T. Yamamoto, H. Yoshida, K. Fukumoto, H. Matsui, T. Nagasaka, Proceedings of JUPITER Workshop on Recent Progress in Reduce Activation Ferritic Steels, Kyoto, 1999.
- [153] S.J. Zinkle, D.H. Plantz, A.E. Bair, R.A. Dodd, G.L. Kulcinski, J. Nucl. Mater. 133&134 (1985) 685.
- [154] G. Albertini, F. Carsughi, R. Coppola, W. Kesternich, G. Mercurio, F. Rustichelli, D. Schwahn, H. Ullmaier, J. Nucl. Mater. 191-194(1992)1327.
- [155] D. J. Reed, Rad. Eff. Vol. 31(1977)129.
- [156] 菅野隆一朗, 京都大学エネルギー科学研究科修士論文, 2001 年.
- [157] N. Yoshida, Q. Xu, H. Watanabe, T. Muroga, and M. Kiritani, J. Nucl. Mater. 191-194 (1992) 1114.
- [158] H. Watanabe, T. Muroga, N. Yoshida, J. Nucl. Mater. 217 (1994) 178.
- [159] H. Watanabe, T. Muroga, N. Yoshida, J. Nucl. Mater. 228 (1996) 261.
- [160] M. Matsuda, N. Yoshida, T. Muroga and M. Kiritani, J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 962.
- [161] T. Muroga, M. Narui, J. Plas. And Fus. Res. Vol. 76, No. 4 (2000) 349.
- [162] M. Kiritani, T. Yoshiie, M. Iseki, S. Kojima, K. Hamada, M. Horiki, Y. Kizuka, H. Inoue, T.

- Tada, Y. Ogasawara, J. Nucl. Mater. 212-215 (1994) 241.
- [163] M. Horiki, T. Yoshiie, M. Iseki, M. Kiritani, J. Nucl. Mater. 271&272 (1999) 256.
- [164] M. Horiki, T. Yoshiie, Q. Xu, M. Iseki, M. Kiritani, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 282.
- [165] N. Nita, K. Fukumoto, A. Kimura, H. Matsui, J. Nucl. Mater. 271&272 (1999) 365.
- [166] N. Nita, T. Iwai, K. Fukumoto, H. Matsui, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 291.
- [167] R.L. Klueh, K. Ehrlich and F. Abe, J. Nucl. Mater. 191-194 (1992) 116.
- [168] M. Tamura, H. Hayakawa, M. Tanimura, A. Hishinuma, T. Kondo, J. Nucl. Mater. 141-143 (1986) 1067.
- [169] M. Tamura, H. Hayakawa, A. Yoshitake, A. Hishinuma, T. Kondo, J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) 620.
- [170] H. Hayakawa, A. Yoshitake, M. Tamura, S. Natsume, A. Gotoh, A. Hishinuma, J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 693.
- [171] F. Abe, T. Noda and M. Okada, J. Nucl. Mater. 195 (1992) 51.
- [172] S. Kunimitsu, Y. You, N. Kasuya, Y. Sasaki and Y. Hosoi, J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 689.
- [173] Y. Kohno, D. S. Gelles, A. Kohyama, M. Tamura and A. Hishinuma, J. Nucl. Mater. 191-194 (1992) 868.
- [174] A. Kimura, H. Matsui, J. Nucl. Mater. 212-215 (1994) 701.
- [175] Y. Kohno, A. Kohyama, M. Yoshino, K. Asakura, J. Nucl. Mater. 212-215 (1994) 707.
- [176] J. J. Kai, R. L. Klueh, J. Nucl. Mater. 230 (1996) 116.
- [177] T. Shibayama, A. Kimura, H. Kayano, J. Nucl. Mater. 233-237 (1996) 270. [178] J. Kieszniowski, Prace Inst. Hutn. 19 (1967) 253.
- [179] S. Mrowec, Defects and diffusion in solids, Elsevier, 1980.
- [180] E.C. Bain and H.W. Paxton, The Alloying Elements in Steel, 2nd Ed., ASM (1961) 59, 112.
- [181] H. Ohtani, T. Tanaka, M. Hasebe and T. Nishizawa: Calphad 12 (1988) 255.
- [182] H. Ohtani, M. Hasebe, K. Ishida and T. Nishizawa: Trans. ISIJ 28 (1988) 1043.
- [183] H. Kayano, A. Kimura, M. Narui, Y. Sasaki, Y. Suzuki and S. Ohta, J. Nucl. Mater. 155-157 (1988) 978.
- [184] H. Kayano, H. Kurishita, A. Kimura, M. Narui, Y. Yamazaki and Y. Suzuki, J. Nucl. Mater. 179-181 (1991) 425.
- [185] 細井祐三編, 「低放射化鉄鋼材料の照射効果」, 昭和 63 年度文部省科学研究費補助金核融合特別研究 (1) 研究成果報告書, 平成元年 3 月.
- [186] M. Tamura, K. Shinozuka, K. Masamura, K. Ishizawa, S. Sugimoto, J. Nucl. Mater. 258-263 (1998) 1158.
- [187] R.E. Stoller, ASTM STP 1325 (1999) 14.
- [188] R.E. Stoller, ASTM STP 1270 (1996) 25.
- [189] R.E. Stoller, ASTM STP 1175 (1993) 394.

- [190] R.E. Stoller, A.F. Calder, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 746.
- [191] C.H. Woo and B.N. Singh, Phys. Stat. Sol. B159 (1990) 609.
- [192] C.H. Woo and B.N. Singh, Phil. Mag. A, Vol. 65, No. 4 (1992) 889.
- [193] M.J. Caturla, N. Soneda, E. Alonso, B.D. Wirth, T. Díaz de la Rubia and J.M. Perlado, J. Nucl. Mater. 276 (2000) 13.
- [194] P.T. Heald, Phil. Mag., (1975) 551.
- [195] A.D. Brailsford and R. Bullough, Proc. R. Soc. Lond. A1465, Vol. 302 (1981) 87.
- [196] R.A. Johnson, J. Nucl. Mater. 83 (1979) 147.
- [197] A.L. Shaeffler, Metal Prog. 56 (1949) 680.
- [198] F.C. Full, Weld. J. 52 (1973) 1935.
- [199] 阿部富士雄, 野田哲二, 岡田雅年, 日本金属学会会報第 32 卷, 第 8 号, 1993 年.
- [200] Ferritic Steel for High-temperature Application, ASM.
- [201] 日本金属学会編, 金属便覧 (改訂 5 版), 丸善, 1990 年.
- [202] ステンレス協会編, ステンレス鋼便覧 (第 3 版), 日刊工業新聞社.
- [203] 日本鉄鋼協会編, 鉄鋼便覧 (第 3 版), 丸善.
- [204] 日本金属学会編, 金属データブック, 丸善.
- [205] F. Abe, H. Araki and T. Noda, Metall. Trans. A, Vol. 22A (1991) 2225.
- [206] 例えば, 木村宏, 材料強度の考え方, アグネ技術センター, 1998 年.
- [207] K.C. Russell and L.M. Brown, Acta Metall. Vol. 20 (1972) 969.
- [208] R.E. Stoller, S.J. Zinkle, J. Nucl. Mater. 283-287 (2000) 349.
- [209] K. Ehrlich, J. Nucl. Mater. 133&134 (1985) 119.
- [210] M.L. Grossbeck, P.J. Maziasz and A.F. Rowcliffe, J. Nucl. Mater. 191-194 (1992) 808.
- [211] K. Suganuma and H. Kayano, J. Nucl. Mater. 118 (1983) 234.
- [212] F.A. Garner, M.L. Hamilton, N.F. Panayatou and G.D. Johnson, J. Nucl. Mater. 103&104 (1981) 803.
- [213] P.M. Kelly, Scripta Met. 6 (1972) 647.

研究業績リスト

第3章に関する論文

[1] R. Kasada, A. Kimura, H. Matsui, M. Narui, “Enhancement of irradiation hardening by nickel addition in the reduced-activation martensitic steel,” Journal of Nuclear Materials, 258-263 (1998) 1199-1203.

[2] R. Kasada, T. Morimura, H. Matsui, M. Narui, A. Kimura, “Two-Step Recovery Process of Irradiation Hardening in 1%Ni doped 9%Cr-2%W Martensitic Steel,” ASTM STP 1366 (2000) 448-459.

第4章に関する論文

[3] R. Kasada, T. Morimura, A. Hasegawa, A. Kimura, “Effect of Helium Implantation on Mechanical Properties and Microstructure Evolution of Reduced-Activation 9Cr-2W Martensitic Steel,” Journal of Nuclear Materials, to be published.

[4] A. Kimura, T. Morimura, R. Kasada, H. Matsui, A. Hasegawa and K. Abe, “Evaluation of Ductile-Brittle Transition Behavior of Helium-Implanted Reduced Activation 9Cr-2W Martensitic Steel by Small Punch Tests,” ASTM STP 1366 (2000) 626-641.

[5] A. Kimura, R. Kasada, R. Sugano, A. Hasegawa and H. Matsui, “Annealing behavior of irradiation hardening and microstructure in helium-implanted reduced activation martensitic steel,” Journal of Nuclear Materials, 283-287 (2000) 827-831.

第5章に関する論文

[6] R. Kasada, A. Kimura, H. Matsui, M. Hasegawa, M. Nurui, “Effects of varying temperature irradiation on the neutron irradiation hardening of reduced-activation 9Cr-2W martensitic steels,” J Journal of Nuclear Materials, 271&272 (1999) 360-364.

第7章に関する論文

[7] R. Kasada, A. Kimura, “Modeling of microstructure evolution and mechanical property change of reduced-activation martensitic steel during varying-temperature irradiation,” *Journal of Nuclear Materials*, 283-287 (2000) 188-192.

その他の論文

[8] R. Kasada, T. Kitao, K. Morishita, A. Kimura, H. Matsui, “Effects of Copper Concentration and Neutron Flux on Irradiation Hardening and Microstructure Evolution in Fe-Cu Model Alloys,” submitted to *ASTM STP 1405* (2002).

[9] R. Kasada, T. Suzuki, K. Itoh, Y. Naruse, A. Kimura, “Relation between Resistivity and Mechanical Properties in HAZ of Welded Pressure Vessel Steel,” submitted to *ASTM STP 1405* (2002).

謝 辞

本研究の遂行にあたり、京都大学エネルギー理工学研究所 木村晃彦教授には多大なる御指導、御協力を賜りました。深く感謝の意を表します。脆弱な私を常々叱咤激励して頂き、重ね重ね感謝致します。

論文の審査にあたっては、木村晃彦教授、井上信幸教授、香山晃教授にお世話になりました。

本研究は日米協力研究事業である JUPITER 計画によるところが中心となりました。2 ヶ月にわたる米国パシフィック・ノースウエスト国立研究所での派遣研究では、Dr. R. H. Jones, Dr. M. L. Hamilton, Dr. D. S. Gelles, Dr. C. A. Lewinsohn を始めとするスタッフの皆様にお世話になりました。JMTR 照射試験においては、日本原子力研究所大洗研究所のスタッフの皆様にお世話になりました。サイクロトロン加速器を用いた研究では、東北大学サイクロトロン・ラジオアイソトープセンターの皆様、長谷川晃助教授をはじめ東北大学量子エネルギー工学専攻阿部勝憲研究室の皆様にお世話になりました。照射後試験では、東北大学金属材料研究所附属材料試験炉利用施設の共同利用に関して、鳴井實助手、山崎正徳技官をはじめ施設の皆様にお世話になりました。東北大学金属材料研究所 α 放射体室佐藤伊佐務助教授をはじめスタッフの皆様にお世話になりました。陽電子寿命測定に関して、東北大学金属材料研究所長谷川雅幸教授にお世話になりました。本学エネルギー理工学研究所での電子顕微鏡観察をはじめとする研究には、香山晃教授をはじめ、加藤雄大助教授、原田敏夫助手（現研究推進員）、安堂正巳博士（現日本原子力研究所博士研究員）、酒瀬川英雄氏にお世話になりました。JLF-1 鋼のシャルピー試験における非照射材のデータは、室蘭工業大学の幸野豊助教授、京都大学エネルギー理工学研究所香山研究室の広瀬貴規氏にご提供頂きました。皆様に深く感謝致します。

本研究は、修士課程時に在籍した東北大学金属材料研究所松井研究室の皆様の御協力無しに完遂することは不可能でした。松井秀樹教授、山本琢也講師、福元謙一助手、二田信康氏をはじめとする学生諸兄に深く感謝致します。また、森村太郎博士（現日本真空㈱）には、実験の手ほどき等で大変お世話になりました。深く感謝致します。

本研究遂行するにあたり、多大なる御協力と御助言を頂きました京都大学エネルギー理工学研究所木村研究室の皆様には、厚くお礼申し上げます。森下和功助教授には、研究者としての姿勢について数多くの御助言を頂戴しました。橋富興宣技官には、材料作製等でお世話になりました。北尾健氏には、陽電子寿命測定等でお世話になりました。菅野隆一朗氏には、ヘリウム効果に関する共同研究等でお世話になりました。梅田文子秘書には、出張時の事務手続き等でお世話になりました。皆様に深く感謝いたします。

最後に、長期にわたる学生生活を支援して頂いた両親に深く感謝いたします。

2001 年 1 月 笠田竜太